

UNIVERSITE DE GENEVE

FACULTE DES SCIENCES

Département de
physique théorique

Professeur C.P. ENZ

Sur les théories
du spectre des excitations élémentaires
et de l'effet Raman
dans l'hélium superfluide

THESE

PRESENTÉE A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE GENEVE
POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Dionys BAERISWYL

d'Alterswil (FR)

THESE No 1628

GENEVE

Atelier d'impression de la Section de physique

1974

UNIVERSITE DE GENEVE

FACULTE DES SCIENCES

Département de
physique théorique

Professeur C.P. ENZ

Sur les théories
du spectre des excitations élémentaires
et de l'effet Raman
dans l'hélium superfluide

THESE

PRESENTÉE A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE GENEVE
POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Dionys BAERISWYL

d'Alterswil (FR)

THESE No 1628

GENEVE

Atelier d'impression de la Section de physique

1974

La faculté des sciences, sur le préavis du professeur C.P. ENZ, directeur de thèse et d'une commission composée des professeurs R. WEHNER (Laboratoires RCA, Zurich) et J. JÄCKLE (Université de Constance) autorise l'impression de la présente thèse, sans exprimer d'opinion sur les propositions qui y sont énoncées.

Genève, le 3 octobre 1973

Le Doyen :

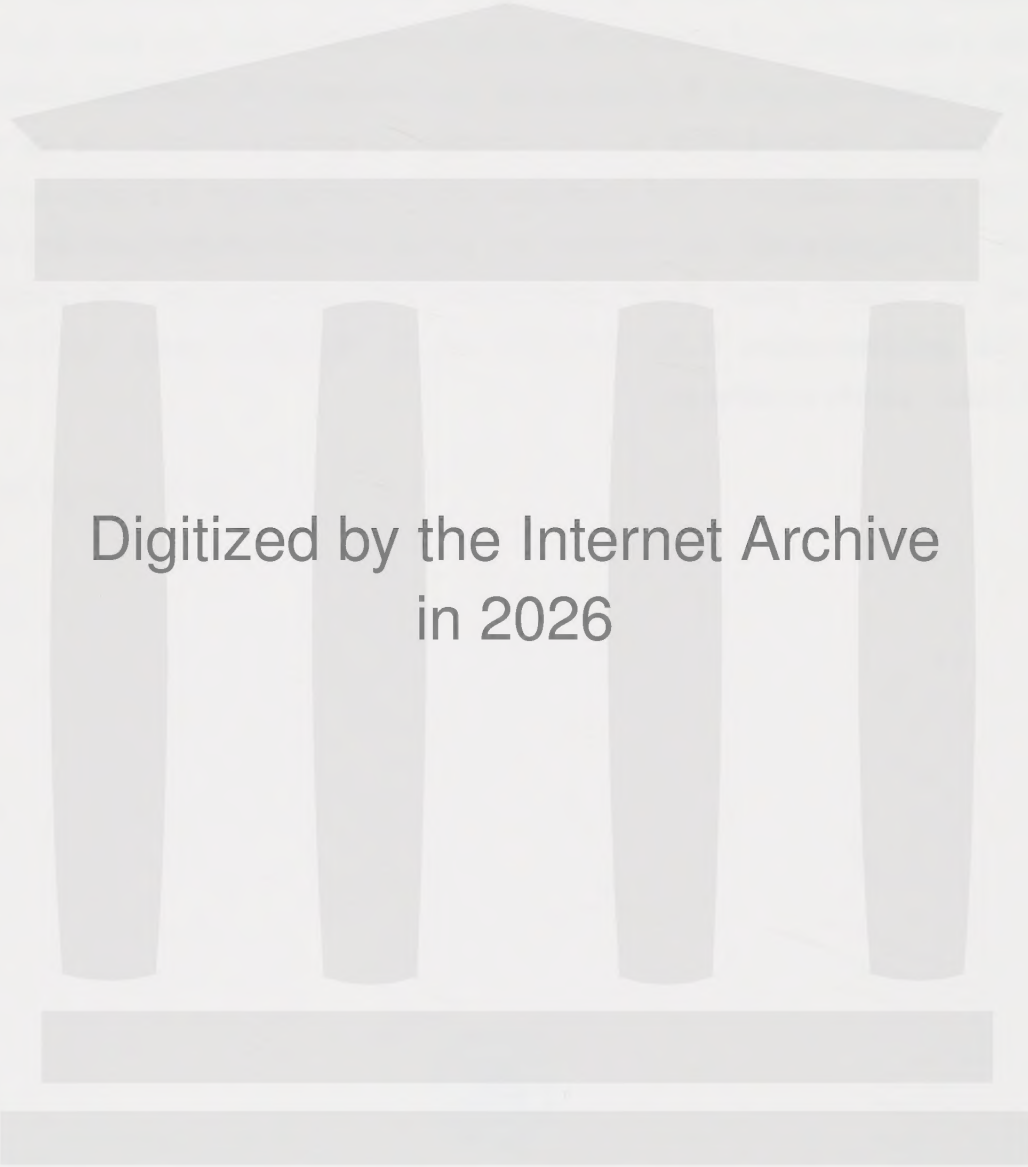
Jean MULLER

Thèse No 1628



REMERCIEMENTS

Ma reconnaissance va en premier lieu à mon directeur de thèse, le professeur C.P. ENZ, qui m'a introduit dans ce domaine de recherche, m'a dirigé et encouragé tout au long de ce travail. Je tiens ensuite à remercier le docteur J. JÄCKLE pour ses précieuses suggestions et sa grande disponibilité. Je ne saurais non plus oublier les membres du département de physique théorique de l'Université de Genève et particulièrement les docteurs M. DRO et N. SZABO pour leur constante collaboration. Je remercie enfin les professeurs T.J. GREYTAK et L. PASSELL pour leurs communications intéressantes.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41545902_0023

INTRODUCTION ET PLAN DU TRAVAIL

La diffusion inélastique de lumière s'est montrée très utile pour l'étude des excitations élémentaires dans les liquides et les solides. Soit ω_0 la fréquence de la lumière incidente et ω celle de la lumière diffusée. Selon le changement de fréquence $\omega - \omega_0$, on distingue deux types : la diffusion de Brillouin où $\omega - \omega_0$ est de l'ordre de 10^{10} Hz, et la diffusion de Raman où $\omega - \omega_0 \approx 10^{13}$ Hz. Dans les solides isolants par exemple, la diffusion de Brillouin provient des phonons acoustiques, tandis que la diffusion de Raman est due aux phonons optiques.

Parmi les fluides, la substance la plus intéressante est l'hélium parce que, d'une part, ses excitations élémentaires sont bien connues, tant du point de vue expérimental que théorique, et d'autre part, l'hélium reste liquide jusqu'à température zéro où le modèle du gaz d'excitations élémentaires représente bien la dynamique du système.

Le but de ce travail est de donner une théorie de la diffusion de Raman dans l'hélium superfluide. Il y a essentiellement deux problèmes à résoudre. Premièrement, il faut montrer quelles sont les excitations élémentaires d'un système de bosons en interaction. Deuxièmement, il faut dériver le couplage entre la lumière et ces excitations. Le premier problème est traité dans les chapitres I et II, le deuxième dans les chapitres III et IV. La résolution de ces deux problèmes permettra de calculer la section efficace différentielle pour la diffusion de Raman et faire la comparaison avec l'expérience (chapitre IV).

TABLE DES MATIERES

<u>Chapitre I</u>	Les excitations élémentaires de l'hélium liquide à température zéro	
Introduction		1
1. Fluctuations de densité et quasi-particules		2
2. Comportement asymptotique du spectre		3
3. La théorie de Feynman-Cohen		7
4. Calcul de perturbation dans la base des fonctions corrélées.		
5. Comparaison avec l'approche des variables collectives		9
6. Effets de dégénérescence		25
 <u>Chapitre II</u>	Le facteur de structure dynamique	30
Introduction		30
1. Propriétés générales		31
2. Calcul approximatif du facteur $Z(k)$		32
3. Contribution des multiphonons dans l'approximation de Feynman-Cohen		34
4. Sur la détermination du paramètre Δ_0 par la diffusion de neutrons		39
5. Effets de résonance		42
 <u>Chapitre III</u>	Théorie générale de la diffusion de lumière dans les liquides diélectriques	50
Introduction		50
1. Définition du coefficient différentiel de diffusion		51
2. Dérivation de l'équation intégrale pour le champ électrique effectif		53
3. Modèle simple de dipôles ponctuels. Diffusion du premier ordre (diffusion de Brillouin)		57
4. Le processus de la diffusion du deuxième ordre		59
5. Le coefficient différentiel de diffusion du deuxième ordre. Termes d'interférence		63

<u>Chapitre IV</u>	La diffusion de Raman dans l'hélium liquide	66
	Introduction	66
	1. Intensités relatives des différentes contributions	67
	2. Calcul du spectre de Raman pour des phonons libres	75
	3. Comparaison à l'expérience	77
	4. Effets des interactions résiduelles	80
	5. Evidence d'un état lié roton-roton ?	91

<u>Conclusions</u>	94
--------------------	----

Appendices

A	Le formalisme des fonctions corrélées	96
	1. Démonstration de la relation fondamentale	96
	2. Construction de la base orthonormée	97
	3. Evaluation des éléments de matrice de l'hamiltonien	99
B	Le gaz de Bose dilué	101
C	Evaluation du déterminant de la matrice dynamique	104
D	$S_{II}(k, \omega)$ dans l'approximation de Feynman-Cohen	107
	1. $k = k_0, \omega \gtrsim \Delta_c$	108
	2. $S_{II}(k)$ pour $k \rightarrow 0$	110
E	Le propagateur du champ électrique	112
	1. Evaluation du propagateur $\vec{F}(\vec{x}-\vec{x}', t-t')$	112
	2. La transformée de Fourier du propagateur dipolaire $\vec{G}(\vec{q})$	114

<u>Références</u>	115
-------------------	-----

CHAPITRE I

LES EXCITATIONS ELEMENTAIRES DE L'HELIUM LIQUIDE

A TEMPERATURE ZERO

INTRODUCTION

Les excitations élémentaires dans l'hélium superfluide, postulées par Landau (L2, L3) pour expliquer les propriétés thermodynamiques et mesurées vingt ans plus tard par la diffusion de neutrons (H4) ont donné lieu à de nombreuses spéculations théoriques. Il y avait essentiellement deux approches. La première, proposée par Bogoliubov (B5) est microscopique et utilise des méthodes de perturbation (L6) et de la théorie des champs (B11, B12, B4, H6, B8). Les principales difficultés sont de trouver un petit paramètre d'expansion et de traiter d'une façon appropriée la condensation de Bose-Einstein (P1). La deuxième approche introduite par Feynman (F4, F5) et généralisée plus tard par Feenberg et ses collaborateurs (méthode des "fonctions de base corrélées") (J4, F1, F2) part du postulat que l'état du système excité peut être représenté (dans l'espace de configuration) par

$$\psi = F \psi_0 \quad (1)$$

où ψ_0 est l'état fondamental et F décrit l'excitation. ψ_0 peut être choisi réel. Alors il est unique et semi-défini positif (P3). L'idée est d'inclure une grande partie des corrélations (spatiales) dans ψ_0 , en utilisant le calcul variationnel ou des données expérimentales telles que le facteur de structure statique mesuré par la diffusion de rayons X (H2, A2). Il n'est pas surprenant que cette deuxième approche - quoiqu'elle soit moins "fondamentale" - donne des résultats plus réalistes que

la première méthode. Ainsi, en se basant sur le postulat (1), un calcul récent (S8, S9) a fourni un spectre qui est en excellent accord avec l'expérience. Mentionnons encore que les résultats exacts concernant le spectre d'excitations sont limités aux grandes longueurs d'onde (G1, D2).

1. Fluctuations de densité et quasi-particules

La notion d'"excitation élémentaire" a, en général, une signification plus complexe que celle de représenter un état propre de l'hamiltonian d'un système (P5, L7, F6). Elle est reliée aux fonctions de Green, en particulier à leurs propriétés analytiques dans le plan complexe de l'énergie (voir par exemple (E5)). Parmi ces fonctions de Green, les propagateurs à une et à deux particules sont les plus importants. Si le propagateur à une particule a des pôles simples qui ne se trouvent "pas trop loin" de l'axe réel, alors ces pôles définissent des "quasi-particules" en interaction faible. A basse température, cet ensemble de quasi-particules est en général assez dilué pour être traité comme un gaz. Les grandeurs thermodynamiques du système qui sont déterminées par le propagateur à une particule (K1) peuvent alors être calculées approximativement. Physiquement, on s'imagine une quasi-particule comme une particule renormalisée par son interaction avec les autres constituants du système. Parfois (par exemple dans He^3) il est possible de décrire cette renormalisation à l'aide d'une masse effective. La quasi-particule est alors associée à un mouvement individuel d'une particule dans le champ créé par les autres. Cependant, il est possible qu'un grand ensemble d'atomes soit le siège de mouvements corrélés, représentant un "mode collectif". Mathématiquement, ces modes sont définis par les pôles du propagateur à deux particules. Dans un liquide, les modes collectifs les plus importants sont les fluctuations de densité.

Dans l'hélium superfluide, les pôles de quasi-particules et de modes collectifs coïncident. Ceci peut être considéré comme un fait expérimental (C1) : en effet, le spectre des fluctuations de densité mesuré par la diffusion de neutrons (C7) décrit correctement les propriétés thermodynamiques de l'hélium superfluide pour des températures qui ne sont pas trop proches de la température critique T_λ (Y2). Du point de vue théorique, l'équivalence des deux pôles peut être facilement démontrée pour le modèle du gaz de Bose dilué en interaction faible (M3). Elle provient de l'occupation macroscopique de l'état le plus bas (du "condensé"). Pour le cas qui correspond à l' He^4 , c'est-à-dire un système dense de bosons en interaction forte, une preuve rigoureuse a été donnée d'abord pour des longueurs d'onde infiniment grandes par Gavoret et Nozières (G1, voir aussi D2) et a été généralisée à des longueurs d'onde arbitraires par Kondor et Szépfalusy (K4). On montre que la présence du condensé fait apparaître les mêmes états intermédiaires et donc les mêmes singularités dans les séries de perturbation des propagateurs à une et à deux particules. La question de l'équivalence des pôles est aussi discutée dans les références C3 et S7.

2. Comportement asymptotique du spectre

Nous aimerions évaluer le spectre des excitations élémentaires à température zéro. Si, dans la limite thermodynamique, le spectre de l'hamiltonian contient une partie discrète, celle-ci correspond à des pôles isolés du propagateur à une particule sur l'axe réel et décrit des excitations stables. Le problème de trouver ces pôles est donc ramené au problème de calculer le spectre de l'hamiltonian. Soit donc

$$\mathcal{H} = T + V \quad (2)$$

l'hamiltonian du système où

$$T = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^N \Delta_i^2 \quad (\hbar = 1)$$

est l'énergie cinétique et V l'énergie potentielle du système :

$$V = \frac{1}{2} \sum_{i,j} U(r_{ij})$$

Comme l'opérateur d'impulsion totale

$$\vec{P} = \frac{1}{i} \sum_i \vec{\nabla}_i$$

commute avec $\mathcal{H}$, nous pouvons choisir une représentation qui est diagonale en $\mathcal{H}$ et $\vec{P}$. Soit $\Psi_{\vec{P}}$ un état propre de $\vec{P}$ et de $\mathcal{H}$:

$$\begin{aligned} \vec{P} \Psi_{\vec{P}} &= \vec{P} \Psi_{\vec{P}} \\ (\mathcal{H} - E_0) \Psi_{\vec{P}} &= \varepsilon_{\vec{P}} \Psi_{\vec{P}} \end{aligned} \quad (3)$$

où E_0 est l'énergie de l'état fondamental. $\varepsilon_{\vec{P}}$ est donc l'énergie d'excitation.

Considérons l'opérateur de densité de particules

$$\zeta(\vec{r}) = \sum_{i=1}^N \delta(\vec{r} - \vec{r}_i) \quad (4)$$

(N = nombre de particules)

et sa transformée de Fourier

$$\zeta_{\vec{k}} = \sum_{i=1}^N e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}_i} \quad (5)$$

Alors l'état $\zeta_{\vec{k}}^+ \Psi_{\vec{P}}$ est un état propre de $\vec{P}$ avec impulsion $\vec{p} + \vec{k}$: l'opérateur $\zeta_{\vec{k}}^+$ ajoute une impulsion $\vec{k}$ au système. Ce n'est en général pas un état propre de l'hamiltonian.

Cependant, à petit k les ξ_k peuvent être choisis comme coordonnées généralisées (F1). Alors, pour de petites fluctuations de densité, l'hamiltonian correspond à celui d'un ensemble d'oscillateurs harmoniques, chacun d'eux possédant une énergie

$$\xi_k^F = \frac{k^2}{2m S(k)} \quad (6)$$

où $S(k)$ est le facteur de structure statique défini par

$$S(k) \equiv \frac{1}{N} \langle \xi_k \xi_k^+ \rangle \quad (7)$$

$\langle \dots \rangle$ est en général une moyenne sur un ensemble statistique, mais comme nous nous limitons à température zéro, ceci signifie la moyenne sur l'état fondamental. Alors, $S(k)$ a le comportement asymptotique suivant :

$$S(k) \underset{k \rightarrow 0}{\sim} \frac{k}{2ms} \quad (8)$$

où s est la vitesse du son. La dépendance linéaire est due aux fluctuations du point zéro (R3, C2). Donc, à petit k , nous obtenons le spectre de phonons acoustiques :

$$\xi_k \underset{k \rightarrow 0}{\sim} sk \quad (9)$$

Considérons aussi la limite $k \rightarrow \infty$. Supposons qu'un neutron à haute énergie est diffusé par un atome du système. Il est naturel d'utiliser l'approximation d'impulsion (voir par exemple N3), c'est-à-dire de supposer que pendant le processus de diffusion, l'atome n'interagit pas avec le reste du système, mais se comporte comme une particule libre. L'énergie d'excitation est alors

$$\xi_k = \frac{k^2}{2m} + \vec{k} \cdot \vec{v} \quad (10)$$

où $\vec{k}$ est le transfert d'impulsion et v la vitesse initiale de l'atome diffusant. La section efficace différentielle devrait donc consister d'une raie étroite due à l'excitation de particules en dehors du condensé ($\vec{v} = 0$ pour le condensé) et d'un fond élargi par l'effet Doppler (H5, pour l'influence des interactions dans les états finals, voir S1, S2). En tenant compte du comportement asymptotique de $S(k)$ à grand k :

$$S(k) \sim 1 \quad (11)$$

(absence d'un ordre à longue portée) on retrouve une énergie d'excitation de la forme (6). La relation (6) est donc une sorte de formule d'interpolation du spectre qui décrit correctement les deux limites asymptotiques $k \rightarrow 0$ et $k \rightarrow \infty$. Elle a été obtenue pour la première fois par Feynman (F4). En partant de l'hypothèse (1), il choisit une fonction d'essai de la forme suivante :

$$F = \sum_{i=1}^N f(r_i) \quad (12)$$

En minimisant la valeur d'attente de l'hamiltonien, il obtient

$$f(r_i) = e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}_i} \quad (13)$$

Les états correspondants sont :

$$\psi_{\vec{k}} = \sum_{\vec{k}} \psi_0 \quad (14)$$

La valeur d'attente de $(H-E_0)$ donne le spectre (6) qui représente donc une borne supérieure du vrai spectre. Nous l'appellerons dès lors spectre de Feynman. A petit k où les $\vec{k}$ peuvent être considérés comme coordonnées généralisées, les états (14) correspondent aux premiers états excités du système d'oscillateurs harmoniques (polynômes de Hermite d'ordre 1).

3. La théorie de Feynman-Cohen

Le spectre de Feynman a deux défauts. D'abord, il est en désaccord avec l'expérience pour des régions intermédiaires par un facteur deux et deuxièmement, les fonctions d'onde (14) ne décrivent pas des états stationnaires, le courant associé ayant une divergence non-nulle.

Considérons le problème d'une impureté en mouvement. Pour un gaz de Bose dilué, on montre (M3) que l'état correspondant est approximativement décrit par la fonction d'onde

$$\psi_k = e^{i\vec{k}\vec{r}} e^{i\int_0^t \omega(\vec{k}\cdot\vec{r}) dt} \psi_c \quad (15)$$

où r est la coordonnée de l'impureté et

$$g(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} -A \frac{\hbar^2}{m} \quad (16)$$

est essentiellement le potentiel de vitesse du fluide représentant un "backflow dipolaire". La même forme pour $g(r)$ apparaît pour une sphère traversant un liquide classique. L'effet de ce backflow est d'une part de restaurer la conservation du courant et d'autre part d'augmenter la masse effective de l'impureté, diminuant ainsi son énergie cinétique.

Une autre approche du problème de l'impureté a été donnée dans (B13). En considérant (15) comme Ansatz, la fonction $g(r)$ est déterminée par le principe variationnel. Le calcul "numériquement exact" montre que $g(r)$ a asymptotiquement la forme dipolaire (16).

Revenons au problème d'une excitation dans un système de bosons. Il est naturel de représenter son état par la version symétrisée de l'état d'une impureté :

$$\psi_{\vec{k}} = \sum_i e^{i\vec{k}\vec{r}_i} e^{i\sum_{j \neq i} g(r_{ij})} \psi_c \quad (17)$$

C'est l'Ansatz de Feynman et Cohen (F5). Malheureusement, les équations variationnelles pour cette fonction d'onde sont intraitables. Mais en développant l'exponentiel en premier ordre

$$\psi_{\vec{k}} \approx \sum_i e^{i\vec{k}\vec{r}_i} \left[1 + i \sum_{j \neq i} g(r_{ij}) \right] \psi_0 \quad (18)$$

et en choisissant la forme dipolaire (16) pour $g(r)$, traitant la constante A comme paramètre qui minimise l'énergie, on obtient un spectre qui est en assez bon accord avec l'expérience ($\sim 20\%$, dans la région des rotons). Si l'on refait le même calcul en substituant la fonction $g(r)$ "exacte" du problème de l'impureté (B13), on trouve un spectre qui ne diffère guère de celui de Feynman-Cohen ($\sim 10\%$).

La fonction d'onde (18) peut être interprétée d'une autre façon (M3). A l'aide de l'opérateur densité (5) et la transformée de Fourier de (16) :

$$\int d^3r e^{-i\vec{q}\vec{r}} g(r) = -4\pi i A \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \quad (19)$$

on peut représenter $\psi_{\vec{k}}$ de la manière suivante :

$$\psi_{\vec{k}} = \left\{ \phi_{\vec{k}}^+ + 4\pi A \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \phi_{\vec{q}}^+ \phi_{\vec{k}-\vec{q}}^+ \right\} \psi_c \quad (20)$$

Si l'état (14) décrit un "phonon nu", alors le backflow correspond au "nuage d'excitations virtuelles" dû à l'interaction entre les phonons nus.

4. Calcul de perturbation dans la base des fonctions corrélées

La forme des états (14) et (20) suggère de choisir la représentation suivante. En partant du système complet d'états

$$|0\rangle \equiv 1 \quad \xi_k^+ |0\rangle, \quad \xi_{k_1}^+ \xi_{k_2}^+ |0\rangle \quad \text{etc.} \quad (21)$$

on forme une base d'états orthonormaux en utilisant la procédure d'orthogonalisation de Schmidt. Eu égard au fait que la forme (20) est une bonne approximation mais aussi aux difficultés qu'on rencontre en essayant d'inclure des états à trois phonons, nous nous limiterons au sous-espace d'états à un et deux phonons (approximation de Tamm-Dancoff). Alors nous obtenons les états suivants (voir appendice A) :

$$\begin{aligned} |\vec{k}\rangle &\equiv \frac{1}{\sqrt{N S(k)}} \xi_{\vec{k}}^+ |0\rangle \\ |\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle &\equiv \frac{1}{N \sqrt{S(k_1) S(k_2)}} \left\{ \xi_{\vec{k}_1}^+ \xi_{\vec{k}_2}^+ |0\rangle - \frac{\langle 0 | \xi_{\vec{k}_1}^+ \xi_{\vec{k}_2}^+ \xi_{\vec{k}_1}^+ \xi_{\vec{k}_2}^+ | 0 \rangle}{N S(\vec{k}_1 + \vec{k}_2)} \xi_{\vec{k}_1 + \vec{k}_2}^+ |0\rangle \right\} \end{aligned} \quad (22)$$

avec les propriétés suivantes :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q} | \vec{k} \rangle &= \delta_{\vec{q}, \vec{k}} \\ \langle \vec{k} | \vec{k}_1, \vec{k}_2 \rangle &= 0 \\ \langle \vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2 \rangle &= 1 + O\left(\frac{1}{N}\right) \end{aligned}$$

Pour calculer les éléments de matrice de l'hamiltonien (2) dans cette base, on utilise le lemme suivant (J2) :

Soit $\Psi_a = F_a \Psi_0$ et $\Psi_b = F_b \Psi_0$ où F_a et F_b dépendent des coordonnées $r_1, \dots, r_N$, alors on a :

$$(\Psi_a, (\mathcal{H} - E_0) \Psi_b) = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^N \int \Psi_0^2 \left(\vec{\nabla}_i F_a^* \right) \left(\vec{\nabla}_i F_b \right) d\mathbf{r}_{1, \dots, N} \quad (23)$$

où E_0 est l'énergie de l'état fondamental ψ_0 . Notons que le potentiel interatomique n'intervient plus explicitement dans le membre de droite, il est absorbé dans ψ_0 . Une démonstration de (23) est donnée dans l'appendice A.

A l'aide de (23) on obtient (voir formules (13) à (15) de l'appendice A) :

$$\begin{aligned} \langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k} \rangle &= \frac{k^2}{2m S(k)} = \varepsilon_k^F \\ \langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle &= \frac{k^2}{2m \sqrt{N S(k) S(q) S(\vec{k} - \vec{q})}} \left\{ S(q) \cdot \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{k^2} (S(\vec{k} - \vec{q}) - S(q)) - \frac{\langle \vec{0} | \varepsilon_{\vec{k}}^+ \varepsilon_{\vec{q}}^+ \varepsilon_{\vec{k} - \vec{q}}^+ | \vec{0} \rangle}{N S(k)} \right\} \\ &\equiv h_{\vec{k}, \vec{q}} \\ \langle \vec{l}, \vec{k} - \vec{l} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle &= \left(\varepsilon_q^F + \varepsilon_{\vec{k} - \vec{q}}^F \right) \left(\varepsilon_{\vec{l}, \vec{q}} + \varepsilon_{\vec{l}, \vec{k} - \vec{q}} \right) + O\left(\frac{1}{N}\right) \end{aligned} \quad (24)$$

Ces trois relations sont exactes. Nous aurons encore besoin des éléments de matrice suivants :

$$\begin{aligned} s_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}} &\equiv \langle \vec{l}, \vec{k} - \vec{l} | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle \\ t_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}} &\equiv \langle \vec{l}, \vec{k} - \vec{l} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle \quad \vec{l} \neq \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \end{aligned} \quad (25)$$

(pour des expressions explicites en approximation de convolution, voir formules (8) et (17) de l'appendice A).

Pour calculer le spectre de l'hamiltonien, il faut résoudre l'équation de Schrödinger (3). Comme les états propres de l'hamiltonien peuvent être choisis comme des états propres de l'impulsion totale, la solution a, dans notre espace restreint, la forme suivante :

$$\psi_{\vec{k}} = \lambda_{\vec{k}} |\vec{k}\rangle + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \eta_{\vec{k}, \vec{q}} |\vec{q}, \vec{k} - \vec{q}\rangle \quad (26)$$

où les coefficients $\lambda_{\vec{k}}$ et $\eta_{\vec{k},\vec{q}}$ sont à déterminer. On a alors l'équation de Schrödinger suivante :

$$0 = \lambda_{\vec{k}} (\mathcal{H} - E_0 - \varepsilon_{\vec{k}}) |\vec{k}\rangle + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \eta_{\vec{k},\vec{q}} (\mathcal{H} - E_0 - \varepsilon_{\vec{k}}) |\vec{q}, \vec{k}-\vec{q}\rangle \quad (27)$$

En multipliant cette équation de gauche par $|\vec{k}\rangle$ et $|\vec{l}, \vec{k}-\vec{l}\rangle$ nous obtenons :

$$\begin{aligned} \lambda_{\vec{k}} (\varepsilon_{\vec{k}}^r - \varepsilon_{\vec{k}}) + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \eta_{\vec{k},\vec{q}} h_{\vec{k},\vec{q}} &= 0 \\ \lambda_{\vec{k}} h_{\vec{k},\vec{l}} + (\varepsilon_{\vec{l}}^F + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}}^r - \varepsilon_{\vec{k}}) \eta_{\vec{k},\vec{l}} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\vec{q} \neq \vec{k}, \vec{l} \\ \vec{k} \neq \vec{l}}} \eta_{\vec{k},\vec{q}} (\varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^r - \varepsilon_{\vec{k}} - \varepsilon_{\vec{q},\vec{l}}^r) &= 0 \end{aligned} \quad (28)$$

où on a utilisé les notations (24) et (25) et la convention :

$$\eta_{\vec{k},\vec{q}} = \eta_{\vec{k},\vec{k}-\vec{q}}$$

Nous avons donc un système homogène d'équations linéaires dont l'équation caractéristique ($\det = 0$) donne les valeurs propres $\varepsilon_{\vec{k}}$. Cette diagonalisation pourrait être faite numériquement. Mais limitons-nous à une résolution approximative en négligeant le dernier terme de la deuxième équation, ce qui revient à supposer que

$$\left| \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, \vec{l}, 0} \eta_{\vec{k},\vec{q}} (\varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^r - \varepsilon_{\vec{k}} - \varepsilon_{\vec{q},\vec{l}}^r) \right| \ll \left| (\varepsilon_{\vec{l}}^F + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}}^r - \varepsilon_{\vec{k}}) \eta_{\vec{k},\vec{l}} \right| \quad (29)$$

Alors nous obtenons :

$$\eta_{\vec{k},\vec{l}} = \lambda_{\vec{k}} \frac{h_{\vec{k},\vec{l}}}{\varepsilon_{\vec{k}} - \varepsilon_{\vec{l}}^F - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}}^r} \quad (30)$$

d'où à l'aide de la première équation de (28) :

$$\varepsilon_{\vec{k}} = \varepsilon_{\vec{k}}^F + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \frac{h_{\vec{k},\vec{q}}^2}{\varepsilon_{\vec{k}} - \varepsilon_{\vec{q}}^F - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^r} \quad (31)$$

et, à l'aide de (26) :

$$\psi_{\vec{k}} = \lambda_{\vec{k}} \left\{ |\vec{k}\rangle + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \frac{v_{\vec{k}, \vec{q}}}{\epsilon_{\vec{k}} - \epsilon_{\vec{q}} - \epsilon_{\vec{k}-\vec{q}}} |\vec{q}, \vec{k}-\vec{q}\rangle \right\} \quad (32)$$

Ces expressions sont identiques à celles obtenues par Jackson et Feenberg (J4) à l'aide de la théorie de perturbation de Brillouin-Wigner. La résolution de l'équation (31) se fait numériquement. Le résultat

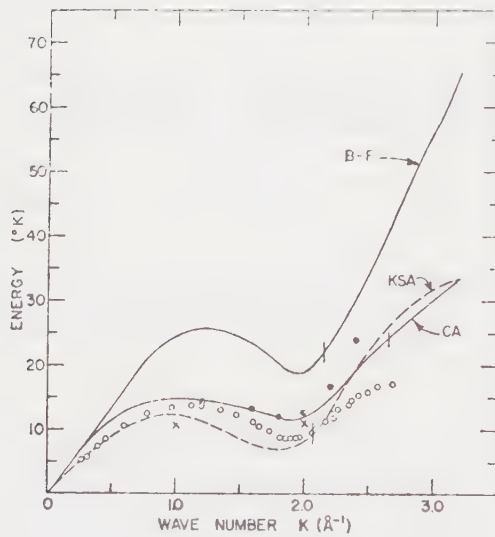


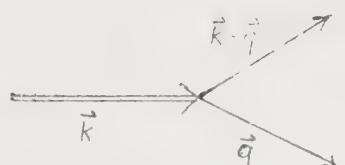
Fig. 1 : Le spectre des excitations élémentaires (selon (F1))
 B-F : spectre de Feynman (6)
 KSA : (31) en utilisant l'approximation de Kirkwood
 CA : (31) en utilisant l'approximation de convolution
 • : spectre de Feynman-Cohen (F5)
 o : résultats expérimentaux (H4)

dépend de l'approximation que l'on choisit pour évaluer les corrélations à trois corps $\langle 0 | s_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}^+ s_{\vec{k}_1}^+ s_{\vec{k}_2}^+ | 0 \rangle$ dans $h_{\vec{k}_1, \vec{q}}$ (formule (24)). En utilisant une fois l'approximation de Kirkwood (factorisation dans l'espace de configuration $\{\vec{x}\}$) et une fois l'approximation de convolution (factorisation dans

l'espace $\{\vec{k}\}$, Jackson et Feenberg (J4) obtiennent un spectre qui, au moins pour $k \lesssim 2.5 \text{ \AA}^{-1}$ est en accord raisonnable avec le spectre mesuré par la diffusion inélastique de neutrons (figure 1). Nous verrons que le désaccord pour les grandes impulsions provient du fait d'avoir négligé des éléments de matrice (25). En fait, à l'aide de (30) le critère (29) devient :

$$\left| \frac{1}{\omega} \sum_{\vec{q}} h_{\vec{k}, \vec{q}} \frac{t_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}}}{\omega_k - \omega_q - \omega_{\vec{k}-\vec{q}}} \right| \ll |h_{\vec{k}, \vec{q}}| \quad (33)$$

Cette relation n'est plus valable si le dénominateur est zéro sur une grande partie de l'espace de phase ou, en d'autres termes, s'il y a possibilité de désintégration



$$(34)$$

(la ligne $\Longrightarrow$ représentant un propagateur de phonon renormalisé et $\longrightarrow$ un phonon nu) pour une valeur de k où la densité d'états à deux phonons

$$\rho_2^F(\vec{k}, \varepsilon_k) = \sum_{\vec{q}} \delta(\varepsilon_k - \varepsilon_q - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}})$$

est grande. En particulier, c'est le cas à l'endroit où le spectre ε_k atteint le seuil de désintégration en deux rotons (le roton représentant une excitation près du minimum du spectre, $k \approx 2 \text{ \AA}^{-1}$) où il faut inclure les éléments de matrice

$$t_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}} = \varepsilon_k S_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}}$$

dans le calcul perturbatif. Alors, la déviation du spectre relativement à son comportement original est considérable. Cet effet - dû à la dégénérescence des états à un et deux rotons - a été discuté par Pitaevskii (P6, voir aussi A1) et interprété comme une hybridisation de deux branches par Chester (C1) et

plus tard par Ruvalds et Zawadowski (R5, Z1). Un effet similaire au seuil de l'émission d'un phonon de grande longueur d'onde a été proposé par Enz (E6, E4).

Tous ces effets de dégénérescence ont la tendance de stabiliser le spectre. On dit que le spectre est stable s'il n'est pas possible qu'une excitation puisse se désintégrer en deux en conservant l'énergie et l'impulsion. Cette notion due à Landau et (donc) longtemps considérée comme sacrée n'a jamais été prouvée et a même été mise en doute récemment (M1). Cependant, les expériences de diffusion de neutrons et de rayons X suggèrent qu'il y a déviation du spectre relativement à son comportement original dès qu'il s'approche d'un seuil d'instabilité. Prenons comme exemple la limite $k \rightarrow 0$. Les expériences de diffusion de rayons X (H2) indiquent le comportement asymptotique suivant :

$$S(k) \underset{k \rightarrow 0}{\sim} \frac{k}{2ms} \left[1 - (1.4 \pm 0.1) \left(\frac{k}{2ms} \right)^2 + \dots \right] \quad (35)$$

ce qui donne un spectre de Feynman courbé vers le haut, donc instable, de la forme

$$\varepsilon_k^F \underset{k \rightarrow 0}{\sim} k \left[1 + (1.4 \pm 0.1) \left(\frac{k}{2ms} \right)^2 + \dots \right] \quad (36)$$

Des calculs de perturbation donnent (L1) :

$$\varepsilon_k \underset{k \rightarrow 0}{\sim} \varepsilon_k^F \left[1 - 1.46 \left(\frac{k}{2ms} \right)^2 + \dots \right] \quad (37)$$

En combinant ces deux équations, on obtient, dans les limites expérimentales, un spectre sans dispersion, en accord avec les expériences de diffusion de neutrons. Cependant, les calculs de la référence (L1) se basent sur la théorie de perturbation habituelle (type Rayleigh-Schrödinger) où les effets de dégénérescence n'apparaissent pas clairement. Nous revien-

drons à ce problème dans la section 6 où nous étudierons les effets de dégénérescence à l'aide d'un modèle simple.

Revenons à la relation (31). Nous l'avons dérivée à l'aide de deux approximations. La première était de restreindre l'espace aux états à un et deux phonons, (approximation de Tamm-Dancoff), la deuxième de négliger les éléments de matrice non-diagonaux entre les états à deux phonons. Nous venons de discuter les limites de validité de la deuxième approximation. Quant à la première, notons qu'elle correspond à négliger les corrélations à quatre corps et plus. En tenant compte du fait que déjà les corrélations à trois corps ne peuvent pas être évaluées exactement et en observant que les différences entre les spectres calculés à l'aide de différentes approximations de ces corrélations à trois corps sont du même ordre que celles entre chacun d'entre eux et le spectre mesuré (voir figure 1) nous concluons que l'approximation de Tamm-Dancoff est raisonnable tant qu'on ne traite pas plus exactement les corrélations à trois corps.

5. Comparaison avec l'approche des variables collectives

Considérons l'hamiltonien de l'oscillateur anharmonique

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} (\dot{p}^2 + \dot{q}^2) + \lambda q^3$$

Il y a essentiellement deux approches au problème de trouver le spectre de $\mathcal{H}$ à l'aide du calcul de perturbation : la première est de calculer les états propres de la partie harmonique (les polynômes de Hermite) et ensuite de représenter la perturbation dans cette base, la deuxième serait de transformer l'hamiltonien en introduisant des opérateurs de création et d'annihilation

$$b = \frac{1}{\sqrt{2}} (q + ip)$$

$$b^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2}} (q - ip)$$

en un hamiltonian de la forme suivante :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} + b^\dagger b + \mathcal{H}_3$$

où $\mathcal{H}_3$ est trilineaire dans les opérateurs $b, b^\dagger$.

Il existe deux approches correspondantes au problème du spectre d'un système de bosons en interaction forte décrit par l'hamiltonian (2). La première est l'approche des fonctions corrélées que nous avons traitée en détail dans la section précédente. En considérant les opérateurs φ_k comme coordonnées généralisées, les états (22) correspondent aux polynômes de Hermite de l'oscillateur harmonique (sauf que le polynôme d'ordre zéro est remplacé par le vrai état fondamental).

Pour trouver l'analogie de la deuxième approche de l'oscillateur anharmonique, il faut d'abord exprimer l'hamiltonian à N corps à l'aide des opérateurs $\varphi_{\vec{k}}$ et leurs conjugués (les coefficients de Fourier $\vec{v}_{\vec{k}}$ du champ de vitesse). Ce programme est loin d'être trivial (Z3, B7, N4, pour une revue des différents travaux, voir D2), et a été résolu d'une façon satisfaisante seulement récemment par Sunakawa, Yamasaki et Kebukawa (S8, S9, Y1). Ils réussissent à exprimer l'hamiltonian (2) à l'aide des variables collectives $\varphi_{\vec{k}}, \vec{v}_{\vec{k}}$ en introduisant un projecteur qui a la valeur 1 dans le sous-espace des états symétriques. Les variables collectives peuvent être transformées en opérateurs de création et d'annihilation, en particulier :

$$\varphi_{\vec{k}} = \sqrt{N S_K^B} (b_{\vec{k}} + b_{-\vec{k}}^\dagger) \quad (38)$$

où

$$S_K^B = \left(1 + \frac{4m\bar{g} V(k)}{k^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (39)$$

correspond au facteur de structure dans l'approximation de Bogoliubov (voir appendice B). L'hamiltonien transformé a la forme suivante :

$$\mathcal{H} = E_c' + \mathcal{H}_c + \mathcal{H}_3 + \delta\mathcal{H} \quad (40)$$

où

$$\mathcal{H}_c = \sum_{\vec{k}} \epsilon_{\vec{k}}^B b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}}$$

$$\mathcal{H}_3 = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} \left\{ \Gamma_{\vec{k}\vec{k}'} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'}^{\dagger} b_{\vec{k}+\vec{k}'} + \Delta_{\vec{k}\vec{k}'} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'}^{\dagger} b_{\vec{k}+\vec{k}'}^{\dagger} + h.c. \right\}$$

avec les coefficients

$$\Gamma_{\vec{k}\vec{k}'} = \frac{1}{4m} \frac{1}{\sqrt{S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B}} (\vec{k} + \vec{k}') \cdot \vec{k}' S_{\vec{k}}^B (1 - S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B S_{\vec{k}'}^B) + \Delta_{\vec{k}\vec{k}'} \quad (41)$$

$$\Delta_{\vec{k}\vec{k}'} = \frac{1}{2m} \frac{1}{\sqrt{S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B}} \vec{k} \cdot \vec{k}' S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B (1 + S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}'}^B)$$

Le spectre non perturbé est celui de Bogoliubov :

$$\epsilon_{\vec{k}}^B = \frac{k^2}{2m S_{\vec{k}}^B} \quad (42)$$

E_c' est une constante qui n'est pas identique à la vraie énergie E_0 de l'état fondamental $|0\rangle$, comme celui-ci n'est pas identique au vide $|0\rangle$ défini par :

$$b_{\vec{k}} |0\rangle = 0 \quad (43)$$

Le terme $\delta\mathcal{H}$ qui contient des interactions à quatre photons et plus est négligé.

Le calcul perturbatif se fait d'une façon identique à celui que nous avons développé dans la section précédente. En particulier, le spectre renormalisé est donné par la formule (31), explicitement :

$$\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k} \rangle + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q}} \frac{|\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle|^2}{\epsilon_{\vec{k}} - \langle \vec{q} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q} \rangle - \langle \vec{k} - \vec{q} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k} - \vec{q} \rangle} \quad (44)$$

où (voir (21), (22)) :

$$\begin{aligned} \langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k} \rangle &= \frac{1}{N S(\vec{k})} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} (\mathcal{H} - E_0) \varphi_{\vec{k}}^{\dagger} | 0 \rangle \\ \langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle &= \frac{1}{N \sqrt{N S(\vec{k}) S(\vec{q}) S(\vec{k} - \vec{q})}} \left\{ \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} (\mathcal{H} - E_0) \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k} - \vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{N S(\vec{k})} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k} - \vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} (\mathcal{H} - E_0) \varphi_{\vec{k}}^{\dagger} | 0 \rangle \right\} \end{aligned} \quad (45)$$

On calcule alors tous les éléments de matrice en premier ordre de l'interaction $\mathcal{H}_3$, en tenant compte de la renormalisation du vide :

$$|0\rangle \approx |0\rangle - \frac{1}{\mathcal{H}_0} \mathcal{H}_3 |0\rangle \quad (46)$$

d'où

$$E_0 = \langle 0 | \mathcal{H} | 0 \rangle = E'_0$$

$$S(\vec{k}) \approx \frac{1}{N} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} \varphi_{\vec{k}}^{\dagger} | 0 \rangle = S_{\vec{k}}^B$$

$$\langle 0 | \varphi_{\vec{k}} (\mathcal{H} - E_0) \varphi_{\vec{k}}^{\dagger} | 0 \rangle \approx N S_{\vec{k}}^B \epsilon_{\vec{k}} \quad (47)$$

$$\langle 0 | \varphi_{\vec{k}} (\mathcal{H} - E_0) \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k} - \vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle \approx \frac{N}{2m} \left\{ k^2 S_{\vec{q}}^B + \vec{k} \cdot \vec{q} (S_{\vec{k} - \vec{q}}^B - S_{\vec{q}}^B) \right\}$$

Dans la dernière relation, on a tenu compte de la renormalisation du vide (pour des détails, voir S8). Alors on a, à l'aide de (45) :

$$\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k} \rangle \approx \epsilon_{\vec{k}}^B$$

$$\begin{aligned} \langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle &\approx \frac{k^2}{2m \sqrt{N S_{\vec{k}}^B S_{\vec{q}}^B S_{\vec{k} - \vec{q}}^B}} \left\{ S_{\vec{q}}^B + \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{k^2} (S_{\vec{k} - \vec{q}}^B - S_{\vec{q}}^B) \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{N S_{\vec{k}}^B} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k} - \vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle \right\} \end{aligned} \quad (48)$$

Ces deux relations sont identiques aux équations (24) si on choisit un potentiel effectif tel que

$$S_k^B = S(k) \equiv S_k \quad (49)$$

Mais ce choix s'impose puisque l'on sait que les éléments de matrice (24) sont exacts. Calculons alors les corrélations à trois corps en premier ordre de $\mathcal{H}_3$:

$$\begin{aligned} \langle 0 | S_k^B S_q^r S_{k-q}^+ | 0 \rangle &= \frac{N}{2m} \frac{1}{\varepsilon_q^r + \varepsilon_{k-q}^r + \varepsilon_k^r} \left\{ \vec{k} \cdot \vec{q} S_{k-q} (1 + S_k S_q) \right. \\ &\quad \left. + \vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) S_q (1 + S_k S_{k-q}) + \vec{q} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) S_k (1 + S_q S_{k-q}) \right\} \quad (50) \end{aligned}$$

C'est une approximation nouvelle qu'on peut comparer aux approximations de Kirkwood ou de convolution. Elle a le bon comportement asymptotique, c'est-à-dire :

$$\langle 0 | S_k^B S_q^r S_{k-q}^+ | 0 \rangle \underset{k, |\vec{k}-\vec{q}| \rightarrow \infty}{\sim} N S_q \quad (51)$$

On vérifie aisément cette relation en exprimant la fonction de corrélation en termes de coordonnées atomiques. A l'aide de (48) et (50) on obtient alors

$$\begin{aligned} \langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q} \rangle &= \frac{1}{2m} \frac{S_k}{\sqrt{N S_k S_q S_{k-q}}} \frac{1}{q^2 S_k S_{k-q} + |\vec{k}-\vec{q}|^2 S_k S_q + k^2 S_q S_{k-q}} \\ &\quad \times \left\{ \left[k^2 \cdot q \cdot |\vec{k}-\vec{q}|^2 \right] \left[\vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) S_q^2 (1 - S_{k-q}^2) + \vec{k} \cdot \vec{q} S_{k-q}^2 (1 - S_q^2) \right] - 2 \vec{k} \cdot \vec{q} \vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) [S_q S_{k-q}]^2 \right\} \quad (52) \end{aligned}$$

En définissant :

$$\varepsilon_k = \varepsilon_k^B (1 - \eta_k)$$

le spectre renormalisé (44) est donné par l'équation suivante :

$$\begin{aligned}
 n_k &= \frac{1}{2 \varepsilon_k} \sum_{\vec{q}} \frac{|\vec{k} \cdot \vec{q}|^2 + |\vec{k} - \vec{q}|^2}{\varepsilon_q + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}} - \varepsilon_k (1 - \eta_k)} \\
 &= -\frac{\varepsilon_k^3}{2k^2} \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} \frac{\{ [q^2 - \vec{q} \cdot (\vec{k} - \vec{q})]^2 [\vec{k} \cdot (\vec{k} - \vec{q}) S_q^2 (1 - S_{\vec{k}-\vec{q}}^2) + \vec{k} \cdot \vec{q} S_{\vec{k}-\vec{q}}^2 (1 - S_q^2)] \}}{[q^2 S_k S_{\vec{k}-\vec{q}} + |\vec{k} - \vec{q}|^2 S_k S_q + k^2 S_q S_{\vec{k}-\vec{q}}]^2} \\
 &\quad \cdot \frac{\{ -2 \vec{k} \cdot \vec{q} \cdot \vec{k} \cdot (\vec{k} - \vec{q}) (S_q - S_{\vec{k}-\vec{q}})^2 \}}{[q^2 S_k S_{\vec{k}-\vec{q}} + |\vec{k} - \vec{q}|^2 S_k S_q + k^2 S_q S_{\vec{k}-\vec{q}} (1 - \eta_k)]} \quad (53)
 \end{aligned}$$

Pour évaluer numériquement cette formule, les trois auteurs choisissent un potentiel contenant quatre paramètres dont un est fixé en demandant que la pente initiale du spectre corresponde à la vraie vitesse du son. Les autres paramètres sont choisis "raisonnablement". Le facteur de structure est alors approximé par (39) et diffère quelque peu du facteur de structure mesuré (figure 2). Le spectre calculé est en excellent accord avec l'expérience (figure 3) pour $k \lesssim 2.5 \text{ \AA}^{-1}$. Nous verrons dans la section prochaine que les désaccords pour $k > 2.5 \text{ \AA}^{-1}$ sont dus au fait d'avoir négligé les interactions à quatre phonons et non pas à l'approximation de Tamm-Dancoff comme c'est suggéré dans S8.

Il est nécessaire de faire deux critiques à l'égard de ce choix du potentiel. D'abord, il n'y a aucun sens d'essayer à construire un potentiel "raisonnable" dans l'espace de configuration puisqu'on a besoin d'un vertex renormalisé qui diffère fortement de celui qu'on déduirait des expériences de diffusion He-He et du deuxième coefficient du viriel (S5). Deuxièmement, en utilisant un facteur de structure qui diffère de celui qu'on mesure (figure 2), on remplace dans (45) les éléments de matrice qu'on connaît exactement par des valeurs approximées qui, pourvu que ce choix soit judicieux, pourraient compenser les lacunes de l'approximation (50) des corrélations à trois corps.

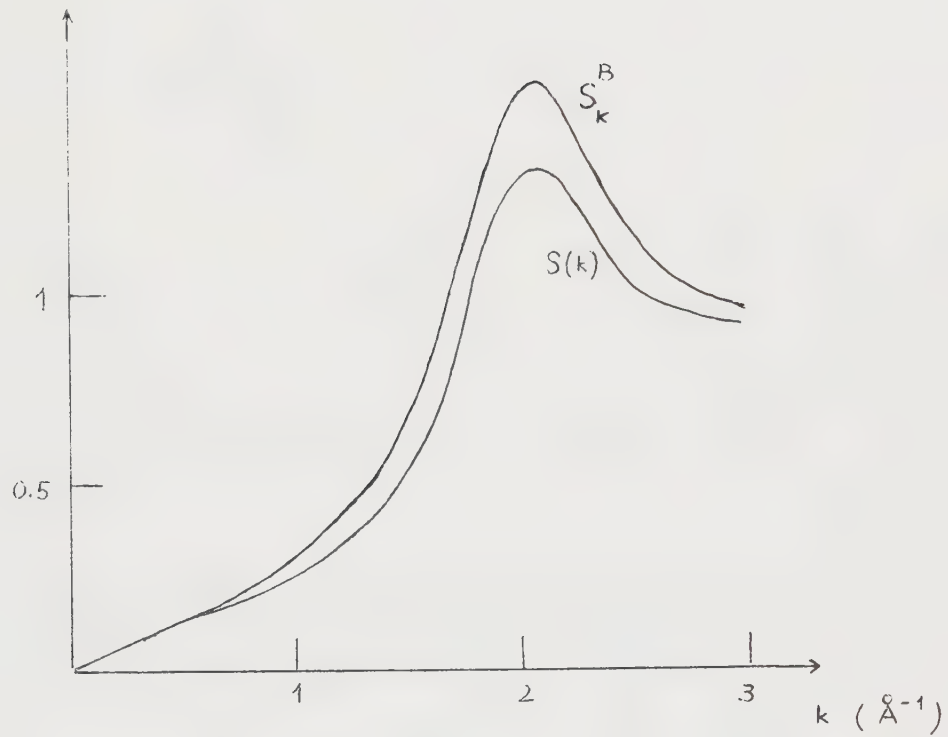


Fig. 2 : Le facteur de structure statique

S_k^B : Formule (39) avec un choix particulier du
potentiel $V(k)$ (selon S9)

$S(k)$: Mesures avec des rayons X (A2)

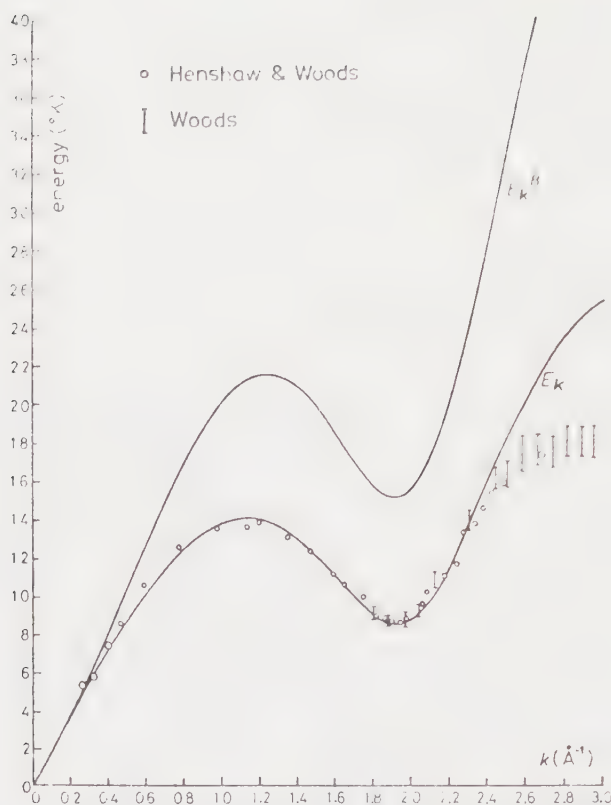


Fig. 3 : Le spectre des excitations élémentaires (selon S9)

E_k : Formule (53) où le facteur de structure S_k^B de la figure 2 a été utilisé.

E_k^B : Spectre de Bogoliubov (42).

Pour juger de la validité de l'approche de Sunakawa et surtout de l'approximation (50) des corrélations à trois corps, il faudrait répéter le calcul en substituant le facteur de structure mesuré dans (53).

Nous concluons que la théorie de Sunakawa est équivalente à celle de Feenberg. La seule différence réside dans l'approximation des corrélations à trois corps. Une approche n'est pas plus fondamentale que l'autre puisque, au moins implicitement,

on a besoin du facteur de structure dans les deux cas. Mais comme on sait calculer le facteur de structure à partir de l'hamiltonien à N corps, tout au moins approximativement (F1, C1, M2), il s'agit de théories microscopiques.

Après avoir montré que les deux formalismes sont équivalents, on peut se demander pourquoi ils sont équivalents. . Pour ce faire, il faudrait en particulier montrer pourquoi les relations (24) et (48) sont identiques ce qui exigerait une analyse plus détaillée que celle présentée ici.

Le grand mérite de l'approche de Sunakawa est de fournir un hamiltonien qui est exprimé en termes d'opérateurs phononiques et du potentiel interatomique, ne contenant aucun paramètre additionnel. Ce n'est pas le cas dans l'approche de Bogoliubov qui introduit comme paramètre additionnel le nombre d'occupation du condensé N_0 . Ce paramètre apparaît en traitant les particules qui se trouvent dans un état d'impulsion zéro (condensé) comme un champ extérieur scalaire. En effectuant une transformation canonique, dite "de Bogoliubov", l'hamiltonien à N corps prend la forme (40) avec les coefficients suivants :

$$\Gamma_{\vec{k}, \vec{k}'} = \frac{1}{\hbar \omega} \sqrt{\frac{N_0}{N}} \frac{1}{\sqrt{S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B}} \left\{ 2 \frac{k^2}{S_{\vec{k}}^B} (1 - S_{\vec{k}}^{B^2}) (1 + S_{\vec{k}'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B) - \frac{|\vec{k} \cdot \vec{k}'|^2}{S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B} (1 - S_{\vec{k}}^B) (1 + S_{\vec{k}'}^B) (1 - S_{\vec{k}+\vec{k}'}^{B^2}) \right\} \quad (54)$$

$$\Delta_{\vec{k}, \vec{k}'} = \frac{1}{\hbar \omega} \sqrt{\frac{N_0}{N}} \frac{1}{\sqrt{S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B}} \frac{k^2}{S_{\vec{k}}^B} (1 - S_{\vec{k}}^{B^2}) (1 + S_{\vec{k}'}^B) (1 - S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B)$$

Ces formules sont dérivées dans l'appendice B. $\delta \mathcal{H}$ correspond à la partie de l'interaction entre des particules en dehors du condensé.

Evaluons comme exemple la fonction de corrélation

$$\langle 0 | \epsilon_{\vec{k}} \epsilon_{\vec{q}}^+ \epsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^+ | 0 \rangle$$

où

$$\varphi_{\vec{k}} = \sum_{\vec{q}} a_{\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{k}-\vec{q}} \approx \sqrt{N_0} \left(a_{\vec{k}} + a_{-\vec{k}}^{\dagger} \right) + \sum'_{\vec{q}} a_{\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{k}-\vec{q}}$$

En tenant compte de la renormalisation du vide (46), les contributions les plus importantes sont :

$$\begin{aligned} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle &\approx N_0 \sum_{\vec{l}} \left\{ \langle 0 | (a_{\vec{k}} + a_{-\vec{k}}^{\dagger}) (a_{\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{q}}) a_{\vec{k}-\vec{q}, \vec{l}}^{\dagger} a_{\vec{l}} | 0 \rangle \right. \\ &\quad + \langle 0 | (a_{\vec{k}} + a_{-\vec{k}}^{\dagger}) a_{\vec{q}, \vec{l}}^{\dagger} a_{\vec{l}} (a_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{k}+\vec{q}}) | 0 \rangle \\ &\quad \left. + \langle 0 | a_{\vec{l}}^{\dagger} a_{\vec{k}, \vec{l}} (a_{\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{q}}) (a_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{k}+\vec{q}}) | 0 \rangle \right\} \\ &= N_0^{\frac{3}{2}} \left\{ \langle 0 | \mathcal{H}_3 \frac{1}{\mathcal{H}_0} (a_{\vec{k}} + a_{-\vec{k}}^{\dagger}) (a_{\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{q}}) (a_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{k}+\vec{q}}) | 0 \rangle \right. \\ &\quad \left. + \langle 0 | (a_{\vec{k}} + a_{-\vec{k}}^{\dagger}) (a_{\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{q}}) (a_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} + a_{-\vec{k}+\vec{q}}) \frac{1}{\mathcal{H}_0} \mathcal{H}_3 | 0 \rangle \right\} \end{aligned}$$

En effectuant la transformation de Bogoliubov que nous écrivons sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} a_{\vec{k}} &= \frac{1}{2\sqrt{S_{\vec{k}}^B}} \left[(S_{\vec{k}}^B + 1) b_{\vec{k}} + (S_{\vec{k}}^B - 1) b_{-\vec{k}}^{\dagger} \right] \\ a_{\vec{k}} + a_{-\vec{k}}^{\dagger} &= \sqrt{S_{\vec{k}}^B} (b_{\vec{k}} + b_{-\vec{k}}^{\dagger}) \end{aligned} \quad (55)$$

et en utilisant (54), on obtient :

$$\begin{aligned} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}} \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle &= N_0 \left\{ \frac{1}{2} (S_{\vec{k}}^B S_{\vec{q}}^B + S_{\vec{q}}^B S_{\vec{k}-\vec{q}}^B + S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}-\vec{q}}^B - 1) \right. \\ &\quad + \frac{N_0}{N} \frac{1}{2m (\varepsilon_{\vec{k}}^B + \varepsilon_{\vec{q}}^B + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^B)} \left[\frac{k^2}{S_{\vec{k}}^B} (1 - S_{\vec{k}}^B) (1 - S_{\vec{q}}^B S_{\vec{k}-\vec{q}}^B) \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{q^2}{S_{\vec{q}}^B} (1 - S_{\vec{q}}^B) (1 - S_{\vec{k}}^B S_{\vec{k}-\vec{q}}^B) + \frac{|\vec{k}-\vec{q}|^2}{S_{\vec{k}-\vec{q}}^B} (1 - S_{\vec{k}-\vec{q}}^B) (1 - S_{\vec{k}}^B S_{\vec{q}}^B) \right] \right\} \end{aligned} \quad (56)$$

Cette forme est très similaire à celle obtenue dans le cadre des variables collectives (50). Pourtant, il y a une différence importante dans le comportement asymptotique :

$$\langle 0 | \varphi_{\vec{k}} \varphi_{\vec{q}}^{\dagger} \varphi_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger} | 0 \rangle \underset{|\vec{k}, \vec{q}| \rightarrow \infty}{\sim} N_0 S_{\vec{q}}^B \quad (57)$$

En tenant compte de (51) et (39) on trouve les deux conditions nécessaires :

$$N = N_0$$

$$S_q^B = S(q) \quad (58)$$

Mais il est impossible de satisfaire simultanément à ces deux contraintes puisque en premier ordre de l'interaction $\mathcal{H}_3$ on a :

$$N_0 = \langle 0 | N - \sum_{\vec{k}} a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} | 0 \rangle$$

$$\approx N - \sum_{\vec{k}} \langle 0 | a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} | 0 \rangle = N - \frac{1}{4} \sum_{\vec{k}} \frac{(S_{\vec{k}}^B - 1)^2}{S_{\vec{k}}^B} \quad (59)$$

En y insérant la deuxième condition, donc les valeurs expérimentales du facteur de structure, on trouve numériquement :

$$\frac{N - N_0}{N} \approx 1 \quad (60)$$

donc la première condition n'est pas satisfaite (même pas approximativement). Le procédé qui nous a permis d'introduire un vertex renormalisé dans l'hamiltonian des variables collectives n'est donc pas applicable au modèle de Bogoliubov.

6. Effets de dégénérescence

Dans les sections précédentes, nous avons utilisé une expression pour le spectre (31) qui semble être une bonne approximation si les états non perturbés ne sont pas dégénérés. Pour montrer les effets de dégénérescence, nous choisissons un modèle simple où les vertices ne dépendent pas des impulsions et nous définissons :

$$g_3 \equiv \sqrt{\Omega} \overline{\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q} \rangle}$$

$$g_4 \equiv \Omega \overline{\langle \vec{l}, \vec{k}-\vec{l} | \mathcal{H} - E_0 - \varepsilon_k | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q} \rangle}$$

g_3 et g_4 sont de l'ordre 1. Nous utilisons toujours l'approximation de Tamm-Dancoff, donc les équations (28). Pour éviter des difficultés provenant de l'équivalence des états $|\vec{q}, \vec{k}-\vec{q}\rangle$ et $|\vec{k}-\vec{q}, \vec{q}\rangle$, nous limitons la sommation à des valeurs $q \leq |\vec{k}-\vec{q}|$ et de même, nous considérons seulement les équations pour $l \leq |\vec{k}-\vec{l}|$. Notation :

$$\sum_{\vec{q}}' \equiv \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0; q \leq |\vec{k}-\vec{q}|}$$

Nous obtenons le système suivant d'équations linéaires :

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_k^0 - \varepsilon_k & \frac{1}{\sqrt{\Omega}} g_3 & \frac{1}{\sqrt{\Omega}} g_3 & \dots & \frac{1}{\sqrt{\Omega}} g_3 \\ \frac{1}{\sqrt{\Omega}} g_3 & \varepsilon_{l_1}^0 + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}_1}^0 - \varepsilon_k & \frac{1}{\Omega} g_4 & \dots & \frac{1}{\Omega} g_4 \\ \frac{1}{\sqrt{\Omega}} g_3 & \frac{1}{\Omega} g_4 & \frac{1}{\Omega} g_4 & \dots & \varepsilon_{l_n}^0 + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}_n}^0 - \varepsilon_k \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \lambda_{\vec{k}} \\ \eta_{\vec{k}, l_1} \\ \vdots \\ \eta_{\vec{k}, l_n} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \end{pmatrix} \quad (61)$$

où n est le nombre de vecteurs d'onde $\vec{l}_i$ considérés (n peut être limité par un cut-off). On a donc à évaluer un déterminant de la forme suivante :

$$D(x) \equiv \begin{vmatrix} x & a & a & \dots & a \\ a & y_1(x) & b & \dots & b \\ a & b & y_2(x) & \dots & b \\ \vdots & & & & \\ a & b & b & \dots & y_n(x) \end{vmatrix} \quad (62)$$

L'équation caractéristique

$$D(x) = 0 \quad (63)$$

déterminera le spectre renormalisé. $D(x)$ peut être calculé exactement (voir appendice C) :

$$D(x) = \prod_{i=1}^n (y_i - b) \left\{ 1 + \left(b - \frac{a^2}{x} \right) \sum_{j=1}^n \frac{1}{y_j - b} \right\} \quad (64)$$

Négligeons ici la possibilité de solutions de la forme :

$$y_j - b = y_m - b = 0 \quad (65)$$

qui sont seulement réalisables s'il existe des vecteurs d'onde $\vec{l}_j, \vec{l}_m$ tel que

$$\varepsilon_{\vec{l}_j}^0 + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}_j}^0 = \varepsilon_{\vec{l}_m}^0 + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}_m}^0 \quad (66)$$

L'équation caractéristique a donc la forme suivante :

$$1 + \left(b - \frac{a^2}{x} \right) \sum_{j=1}^n \frac{1}{y_j - b} = 0 \quad (67)$$

ou explicitement :

$$1 + \left(g_4 - \frac{g_3^2}{\varepsilon_K^0 - \varepsilon_K} \right) \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{q}}' \frac{1}{\varepsilon_{\vec{q}}^0 + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^0 - \varepsilon_K - \frac{1}{\Omega} g_4} = 0$$

Dans la limite thermodynamique nous obtenons :

$$1 + \left(g_4 - \frac{g_3^2}{\varepsilon_K^0 - \varepsilon_K} \right) \frac{1}{(2\pi)^3} \int' d^3q \frac{1}{\varepsilon_{\vec{q}}^0 + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^0 - \varepsilon_K} = 0 \quad (68)$$

où

$$\int' d^3q \equiv \int_{q \leq |\vec{k}-\vec{q}|} d^3q$$

En multipliant par $\varepsilon_K - \varepsilon_K^0$ et en réarrangeant les termes,

il vient :

$$\varepsilon_k = \varepsilon_k^0 - g_3^2 \frac{r(k, \varepsilon_k)}{1 + g_4^2 r(k, \varepsilon_k)} \quad (69)$$

où

$$r(k, \varepsilon_k) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3q \frac{1}{\varepsilon_q^0 + \varepsilon_{k-q}^0 - \varepsilon_k} \quad (70)$$

ε_k comme valeur propre d'une matrice symétrique doit être réelle, donc aussi $r(k, \varepsilon_k)$. Mais ceci implique que le dénominateur de (70) soit différent de zéro, donc que le processus de désintégration (34) soit interdit. Nous choisissons comme exemple un spectre non-renormalisé de forme parabolique :

$$\varepsilon_k^0 = \Delta_0 + \frac{(k - k_0)^2}{2\mu} \quad (71)$$

où Δ_0, k_0, μ sont des paramètres. C'est le spectre des rotons proposé par Landau (L3). Avec ce choix, des solutions réelles de (70) sont possibles seulement pour $\varepsilon_k < 2\Delta_0$. Limitons-nous dès lors à ce cas et examinons ce qui se passe si ε_k s'approche du seuil de désintégration $2\Delta_0$.

A l'aide de (71), la fonction $r(k, \varepsilon_k)$ peut être calculée explicitement (voir P6 ou A1). On a pour $\varepsilon_k < 2\Delta_0$:

$$r(k, \varepsilon_k) = -a \log (2\Delta_0 - \varepsilon_k) \quad (72)$$

où a est une constante positive. En introduisant cette relation dans (69), on obtient :

$$\varepsilon_k = 2\Delta_0 - b \exp \left\{ -\frac{1}{a} \left(\frac{g_3}{g_4} \right)^2 \frac{1}{\varepsilon_k - \varepsilon_k^0 + \frac{g_3^2}{g_4}} \right\} \quad (73)$$

où $b = \exp \left(\frac{1}{g_4} \right)$

On trouve une solution de cette équation qui s'approche du seuil $2\Delta_0$ avec une pente infiniment plate et qui rejoint $2\Delta_0$ au point k_c déterminé par l'équation suivante :

$$\varepsilon_{k_c}^0 = 2\Delta_c + \frac{g_3^2}{g_4} \quad (74)$$

Cette solution de (73) ne continue pas au-delà de $k = k_c$. k_c représente donc le point final de cette branche.

Notons encore que le calcul qui a conduit à l'équation (69) pourrait être répété avec les états renormalisés et les couplages correspondants. On retrouverait (69). En répétant ce procédé une infinité de fois, on obtiendrait à la limite (pourvu qu'il y ait convergence) :

$$r(k, \varepsilon_k) \longrightarrow \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3q \frac{1}{\varepsilon_q + \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}} - \varepsilon_k}$$

Cette fonction (et donc l'équation à valeurs propres (69)) est seulement réelle si le spectre ε_k est stable.

CHAPITRE II

LE FACTEUR DE STRUCTURE DYNAMIQUE

INTRODUCTION

Le spectre des excitations élémentaires dans l'hélium liquide peut être étudié à l'aide de la diffusion inélastique de neutrons thermiques. Ces expériences, proposées par Cohen et Feynman (C4) et faites par Henshaw et Woods (H4) (voir aussi C7) sont extrêmement utiles pour toute description phénoménologique et représentent un test implacable pour toute théorie microscopique. Un neutron de masse m_n est diffusé inélastiquement en transférant une énergie

$$\omega = \frac{1}{2m_n} (k_i^2 - k_f^2) \quad (1)$$

et une impulsion

$$\vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_f \quad (2)$$

au liquide, où $\vec{k}_i$, $\vec{k}_f$ sont respectivement les impulsions initiales et finales du neutron. A température zéro, c'est possible seulement si une ou plusieurs excitations élémentaires correspondant à une impulsion $\vec{k}$ et une énergie ω sont créées dans le liquide. Il a été démontré par Van Hove (V1) que la section efficace pour un tel processus, dans l'approximation de Born, est donnée par :

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} = A_0 S(k, \omega) \quad (3)$$

où le facteur A_0 dépend de k_i , k_f et de la longueur de diffusion n-He. $S(k, \omega)$ est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation suivante :

$$S(k, t) \equiv \frac{1}{2\pi N} \langle \varphi_{\vec{k}}(t) \varphi_{\vec{k}}^+ \rangle \quad (4)$$

où $\varphi_{\vec{k}}(t)$ indique la représentation de Heisenberg. $S(k, \omega)$ est appelé "facteur de structure dynamique".

1. Propriétés générales

Le facteur de structure dynamique satisfait aux règles de somme bien connues (voir par exemple F1, E7) :

$$\int_{-\infty}^{\infty} S(k, \omega) d\omega = S(k) \quad (5)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \omega S(k, \omega) d\omega = \frac{k^2}{2m} \quad (6)$$

La relation (6) est la célèbre "f-sum rule".

A température zéro, à l'aide d'une base $\{|n\rangle\}$ d'états propres de l'hamiltonien, le facteur de structure dynamique s'écrit de la manière suivante :

$$\begin{aligned} S(k, \omega) &= \frac{1}{2\pi N} \int dt e^{i\omega t} \langle 0 | \varphi_{\vec{k}}(t) \varphi_{\vec{k}}^+ | 0 \rangle \\ &= \frac{1}{N} \sum_n |\langle 0 | \varphi_{\vec{k}} | n \rangle|^2 \delta(\omega - \varepsilon_{n0}) \end{aligned} \quad (7)$$

où ε_{n0} est l'énergie d'excitation de l'état $|n\rangle$. Définissons alors :

$$Z(k) \equiv \frac{1}{N} |\langle 0 | \varphi_{\vec{k}} | \psi_{\vec{k}} \rangle|^2 \quad (8)$$

où les $\psi_{\vec{k}}$ sont les premiers états excités d'impulsion $\vec{k}$: les

états à un phonon. $Z(k)$ décrit donc l'intensité relative des excitations à un phonon :

$$S(k, \omega) = Z(k) \delta(\omega - \varepsilon_k) + S_{II}(k, \omega) \quad (9)$$

et $S_{II}(k, \omega)$ correspond à la contribution multiphononique. La décomposition (9) a été proposée par Miller, Pines et Nozières (M3).

2. Calcul approximatif du facteur $Z(k)$

L'amplitude des excitations à un phonon peut être évaluée facilement en utilisant l'approximation (I.32) pour Ψ_k . En fait, en tenant compte de l'orthogonalité

$$\langle \vec{k} | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q} \rangle = 0 \quad (10)$$

on obtient à l'aide de (I.7) :

$$Z(k) = \lambda_k^2 S(k) \quad (11)$$

Le coefficient λ_k est déterminé par la condition de normalisation suivante (voir (I.32)) :

$$1 = \langle \Psi_{\vec{k}} | \Psi_{\vec{k}} \rangle = \lambda_k^2 \left\{ 1 + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q}} \frac{h_{\vec{k}, \vec{q}}^2}{(\varepsilon_k - \varepsilon_q^F - \varepsilon_{k-q}^F)^2} \right\} \quad (12)$$

Nous avons négligé de petites déviations de l'orthogonalité entre les états à deux phonons (voir la formule (8) de l'appendice A). Nous obtenons donc la relation intéressante :

$$Z(k) = \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q}} \frac{h_{\vec{k}, \vec{q}}^2}{(\varepsilon_k - \varepsilon_q^F - \varepsilon_{k-q}^F)^2}} S(k) \quad (13)$$

Calculons le denuminateur de cette expression dans la limite $k \rightarrow 0$. Dans ce cas, l'approximation de convolution pour $h_{k,q}$ (formule (16) dans l'appendice A) devient exacte (voir F2). En développant en puissances de k , on obtient à l'ordre le plus bas :

$$h_{k,q} \underset{k \rightarrow 0}{\sim} \frac{k^2}{2m \sqrt{N S(k)}} \left\{ 1 - S(q) - \frac{S'(q)}{q S(q)} \left(\frac{\vec{q} \cdot \vec{k}}{k} \right)^2 \right\} \quad (14)$$

où $S'(q) \equiv \frac{dS}{dq}(q)$

Alors on trouve dans la limite thermodynamique :

$$\frac{1}{2} \sum_{\vec{q}} \frac{h_{k,q}^2}{(\epsilon_k - \epsilon_q^F - \epsilon_{k-q}^F)^2} \underset{k \rightarrow 0}{\sim} b k^3 \quad (15)$$

où

$$b \equiv \frac{ms}{(4\pi)^2 \epsilon_0} \int_0^\infty dq \left(\frac{S(q)}{q} \right)^2 \left\{ 2[1-S(q)]^2 - \frac{4}{3}[1-S(q)] \frac{q S'(q)}{S(q)} + \frac{2}{5} \left[\frac{q S'(q)}{S(q)} \right]^2 \right\} \quad (16)$$

Nous avons tenu compte du comportement asymptotique (I.8) de $S(k)$. Cette expression doit être calculée numériquement. Les contributions principales proviennent des régions où $S'(q)$ est grand ($q \approx 1.6 \text{ \AA}^{-1}$, voir fig. 2 du chapitre précédent). En utilisant les résultats expérimentaux de H2 et A2 pour le facteur de structure, le calcul à l'ordinateur donne

$$b = 0.33 \text{ \AA}^3$$

A l'aide de (13) et la règle de somme (5), on obtient alors :

$$S(k) - Z(k) \underset{k \rightarrow 0}{\sim} B k^4 \quad (17)$$

où $B = 0.1 \text{ \AA}^4$ (nous avons de nouveau utilisé (I.8)). Un tel comportement (sans donner d'estimation pour la constante B) a été suggéré dans M3 et confirmé par les expériences de Cowley et Woods (65). Ces derniers obtiennent :

$$B = 0.55 \pm 0.1 \text{ \AA}^4$$

D'autre part, les expériences montrent que les excitations triples contribuent beaucoup moins au facteur de structure dynamique que les excitations doubles. Nous en concluons que l'approximation de Tamm-Dancoff (I.26) est raisonnable et ne peut pas être responsable du désaccord quantitatif entre les valeurs de B théoriques et expérimentales. La source principale d'erreur pour notre calcul est donc le fait d'avoir négligé les éléments de matrice entre les états à deux phonons (I.25). Ces derniers peuvent donner lieu à des effets de résonance qui modifient fortement la partie multiphononique de $S(k, \omega)$ (R5, I1, P7). Nous discuterons plus tard cet aspect qualitativement.

3. Contribution des multiphonons dans l'approximation de Feynman-Cohen.

Pour estimer $S_{II}(k, \omega)$ il est avantageux d'utiliser la seconde quantification. Soit

$$\begin{aligned} \alpha_{\vec{k}}^+ &\equiv \alpha^+ (\psi_{\vec{k}}) \\ \alpha_{\vec{k}} &\equiv \alpha (\psi_{\vec{k}}) \end{aligned} \tag{18}$$

les opérateurs de création et d'annihilation correspondant aux vraies excitations élémentaires du système, satisfaisant aux règles de commutation des bosons. Négligeons par simplicité l'interaction résiduelle entre les excitations. L'hamiltonien a donc la forme suivante :

$$\mathcal{H} = \sum_{\vec{k}} \epsilon_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}}^+ \alpha_{\vec{k}} \tag{19}$$

où les $\epsilon_{\vec{k}}$ sont les vraies énergies d'excitation. Pour évaluer le facteur de structure dynamique, il faut représenter l'opéra-

teur densité $\varphi_{\vec{k}}$ par les $\alpha_{\vec{k}}$ et $\alpha_{\vec{k}}^+$. Nous avons vu (voir la section 2 du premier chapitre) que $\varphi_{\vec{k}}^r$ ajoute une impulsion au système. Ce fait et l'hermiticité

$$\varphi_{\vec{k}}^+ = \varphi_{-\vec{k}}$$

suggèrent la représentation suivante :

$$\varphi_{\vec{k}}^r = \varphi_{\vec{k}} (\alpha_{-\vec{k}} + \alpha_{\vec{k}}^+) + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \tau_{\vec{k}, \vec{q}} (\alpha_{-\vec{q}} + \alpha_{\vec{q}}^+) (\alpha_{-\vec{k}+\vec{q}} + \alpha_{\vec{k}-\vec{q}}^+) + \dots \quad (20)$$

où les coefficients $\varphi_{\vec{k}}$ et $\tau_{\vec{k}, \vec{q}}$ sont à déterminer. Dans ce modèle simple, le facteur de structure dynamique (7) peut être calculé facilement puisque les états

$$|0\rangle, \alpha_{\vec{k}}^+ |0\rangle, \alpha_{\vec{k}_1}^+ \alpha_{\vec{k}_2}^+ |0\rangle \text{ etc.} \quad (21)$$

sont des états propres de l'hamiltonien et forment une base. De plus, l'état fondamental $|0\rangle$ est le vide des excitations :

$$\alpha_{\vec{k}} |0\rangle = 0 \quad (22)$$

On obtient à l'aide du développement (20) :

$$S(k, \omega) = \frac{1}{N} \left\{ \varphi_{\vec{k}}^2 \delta(\omega - \varepsilon_{\vec{k}}) + \frac{1}{8} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} |\tau_{\vec{k}, \vec{q}} + \tau_{\vec{k}, \vec{k}-\vec{q}}|^2 \delta(\omega - \varepsilon_{\vec{q}} - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}) \right\} \quad (23)$$

où nous nous sommes limités à l'espace de Tamm-Dancoff et aux deux premiers termes de la série (20). L'expression (23) a été étudiée qualitativement par Jackson (J1) qui a supposé que les coefficients $\varphi_{\vec{k}}$ et $\tau_{\vec{k}, \vec{q}}$ sont des constantes et a utilisé le spectre mesuré pour $\varepsilon_{\vec{k}}$.

Un exemple est donné dans la figure 1. La ligne mince

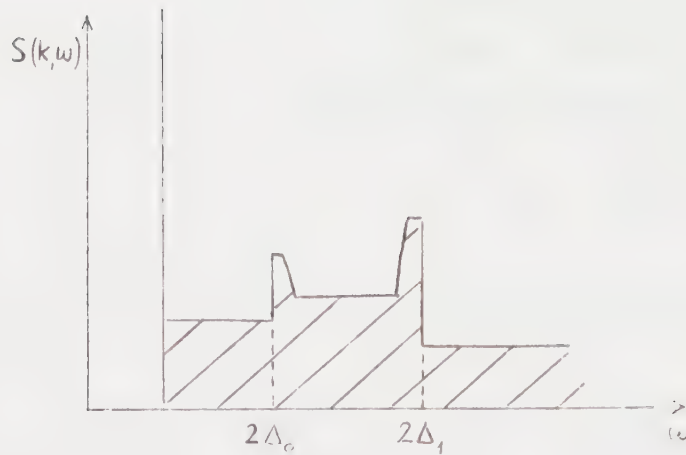


Fig. 1 : $S(k, \omega)$ pour $k \approx 0.2 \text{ \AA}^{-1}$
(selon J1).

représente un phonon stable. Le reste correspond au fond multi-phononique qui est néanmoins structuré. Les deux pics proviennent de la grande densité d'états qui existe au seuil de l'excitation de deux rotons à $2 \Delta_0$ et de deux "maxons" (excitations dans la région du premier maximum du spectre) à $2 \Delta_1$.

Les coefficients $\sigma_{\vec{k}}$ et $\tau_{\vec{k}, \vec{q}}$ peuvent être estimés approximativement. En comparant (23) à (9) on a :

$$\sigma_{\vec{k}}^2 = N Z(k) \quad (24)$$

Nous avons relié $Z(k)$ au facteur de structure statique dans l'expression (13) sans faire le calcul numérique.

Dans l'approximation de Feynman-Cohen, $Z(k)$ a été calculé explicitement par Burke, Mayor et Chester (B13) (voir fig. 2, p. 37). L'accord avec l'expérience est raisonnable. Les déviations à petit k sont dues principalement à des difficultés numériques et à l'extrapolation du facteur de structure statique.

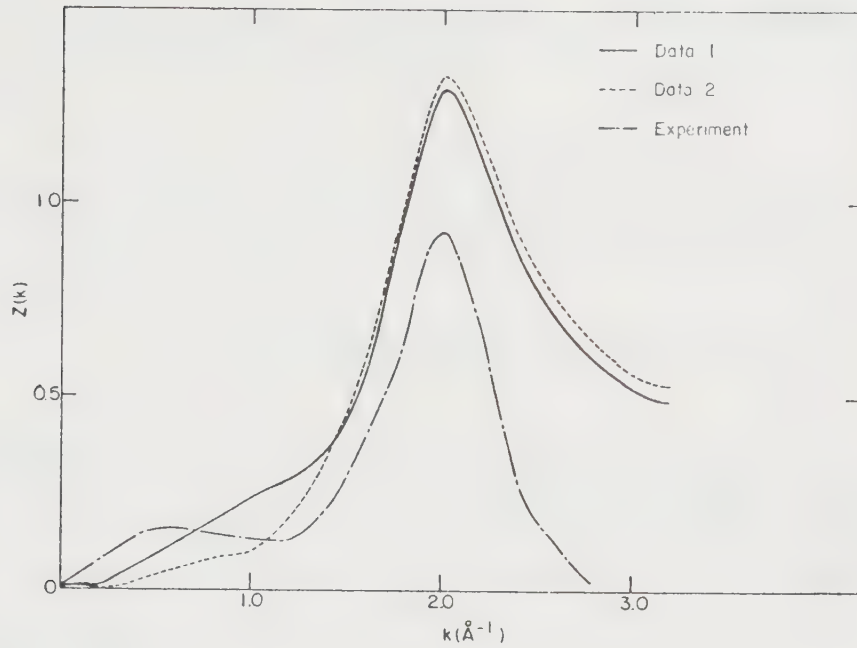


Fig. 2 : $Z(k)$ dans l'approximation de Feynman-Cohen (selon B13).
Données 1,2 : Calculs avec le facteur de structure $S(k)$ de H3 (interpolé à petit k de deux manières différentes).
Expérience : H4.

La relation (24) nous permet alors de calculer les coefficients $\sigma_{\vec{k}}$.

Pour estimer les coefficients $\tau_{\vec{k},\vec{q}}$ dans la même approximation, nous demandons que l'état de Feynman-Cohen représente une vraie excitation à un phonon :

$$\psi_{\vec{k}}^{FC} \propto \alpha_{\vec{k}}^+ |0\rangle \quad (25)$$

En insérant la série (20) dans (I.20), il vient (au deuxième

ordre) :

$$\psi_{\vec{k}}^{FC} = \sigma_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}}^+ |0\rangle + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \left\{ \tau_{\vec{k}, \vec{q}} + \frac{8\pi A}{\Omega} \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \sigma_{\vec{q}} \sigma_{\vec{k}-\vec{q}} \right\} \alpha_{\vec{q}}^+ \alpha_{\vec{k}-\vec{q}}^+ |0\rangle$$

A cause de (25), le coefficient devant les états à deux phonons doit être zéro, d'où à l'aide de (24) :

$$\tau_{\vec{k}, \vec{q}} = - 8\pi A \epsilon_0 \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \sqrt{Z(q) Z(\vec{k}-\vec{q})} \quad (26)$$

Alors la partie multiphononique du facteur de structure (23) prend la forme suivante :

$$S_{II}(k) \equiv \int d\omega S_{II}(k, \omega) = 8\pi^2 A^2 \epsilon_0 \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{q}} Z(q) Z(\vec{k}-\vec{q}) \left[\frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} + \frac{\vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q})}{|\vec{k}-\vec{q}|^2} \right]^2 \quad (27)$$

A la limite $k \rightarrow 0$ on obtient (voir appendice D.2) :

$$S_{II}(k) \underset{k \rightarrow 0}{\sim} B k^4 \quad (28)$$

où

$$B = \frac{28}{15} A^2 \epsilon_0 \int_0^\infty dq \left(\frac{Z(q)}{q} \right)^2 \quad (29)$$

Les paramètres A et ϵ_0 ont les valeurs numériques suivantes (voir W1 et F5) :

$$\begin{aligned} A &= - 3.8 \text{ \AA}^3 \\ \epsilon_0 &= 0.02 \text{ \AA}^{-3} \end{aligned} \quad (30)$$

D'autre part, l'intégration graphique donne

$$\int dq \left(\frac{Z(q)}{q} \right)^2 \approx \begin{cases} 0.17 \text{ \AA}^{-1} & (Z(q) \text{ mesuré}) \\ 0.35 \text{ \AA}^{-1} & (\text{approximation de} \\ & \text{Feynman-Cohen}) \end{cases}$$

Les valeurs de B correspondantes sont :

$$\begin{aligned} B_{\text{exp}} &\approx 0.1 \text{ \AA}^4 \\ B_{\text{FC}} &\approx 0.2 \text{ \AA}^4 \end{aligned} \quad (31)$$

Donc, l'approximation (26) donne le même comportement à petite impulsion que la méthode plus exacte des fonctions corrélées (17). De plus, les coefficients B sont du même ordre de grandeur.

4. Sur la détermination du paramètre Δ_0 par la diffusion de neutrons.

L'approximation de Feynman-Cohen devrait être particulièrement appropriée à décrire le backflow de longue longueur d'onde créé par l'excitation d'un roton d'impulsion k_0 (C1, B13). En d'autres termes, l'approximation (26) pour la contribution multiphononique devrait être une bonne approximation si $k \approx k_0$ et q est petit. Mais c'est justement ce domaine qui détermine la fonction $S_{\text{II}}(k_0, \omega)$ pour $\omega \gtrsim \Delta_0$ (voir appendice D). On obtient en premier ordre de $\frac{\omega - \Delta_0}{\mu s^2}$ (formule D.13) :

$$S_{\text{II}}(k_0, \omega) = \frac{4}{3} A^2 \varrho_0 k_0^2 Z(k_0) \frac{1}{m s^3} (\omega - \Delta_0) \quad (32)$$

En insérant les valeurs numériques (30) et

$$\begin{aligned} k_0 &= 1.95 \text{ \AA}^{-1} \\ s &= 2.38 \times 10^{12} \text{ \AA s}^{-1} \end{aligned} \quad (33)$$

on trouve :

$$S_{\underline{u}}(k_0, \omega) \approx \frac{1}{5} 10^{-2} Z(k_0) (\omega - \Delta_0) \Theta(\omega - \Delta_0) \text{ } ^{\circ}\text{K}^{-1} \quad (34)$$

$$(\omega - \Delta_0 \text{ en } ^{\circ}\text{K})$$

Pour comparer le facteur de structure dynamique à l'expérience, il faut tenir compte de la résolution expérimentale qui est bien représentée par une fonction gaussienne de la forme suivante :

$$g(\omega - \omega') = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \gamma} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\omega - \omega'}{\gamma} \right)^2 \right\} \quad (35)$$

Alors, en négligeant les effets mineurs du temps de vie des excitations et de la résolution finie de l'angle de diffusion, la section efficace (3) prend la forme suivante :

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} \propto \int d\omega' g(\omega - \omega') S(k, \omega') \quad (36)$$

Dans la région du roton, il vient à l'aide de (23), (24) et (34) :

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} \propto g(\omega - \Delta_0) + \frac{1}{300} \int_{\Delta_0}^{\infty} d\omega' g(\omega - \omega') (\omega' - \Delta_0) \quad (37)$$

Cette fonction est tracée dans la figure 3 pour une résolution qui correspond à celle de Cowley et Woods (C7). On remarque que la contribution multiphononique déplace vers le haut la partie droite de la raie de

$$2 \delta E \approx 0.2 \text{ } ^{\circ}\text{K}$$

sans affecter visiblement la partie gauche. Donc, en fittant une Gaussienne à la raie mesurée, on trouve un paramètre Δ_0 qui est trop grand de $\delta E \approx 0.1 \text{ } ^{\circ}\text{K}$. Cowley et Woods (C7)

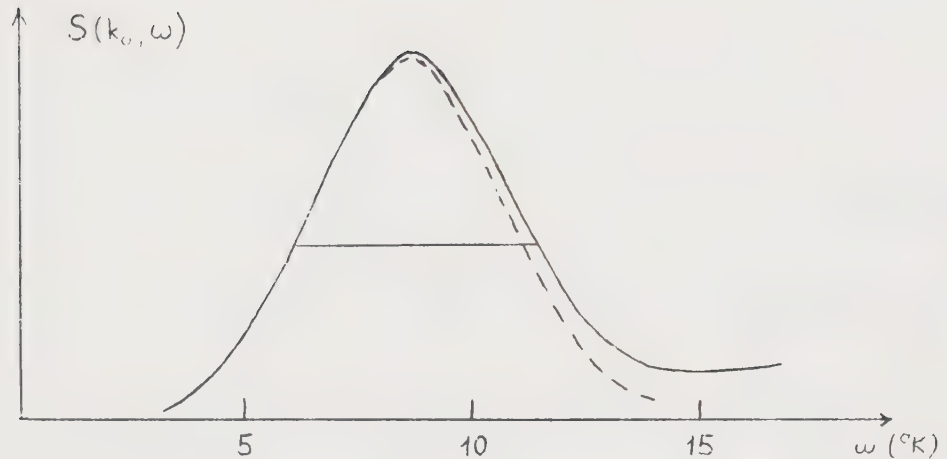


Fig. 3 : Le facteur de structure dynamique dans la région du roton. Contribution multiphononique.

indiquent :

$$\Delta_o^{CW} = (8.67 \pm 0.04) ^\circ K$$

A part des doutes que l'on peut exprimer à l'égard de la petitesse de l'erreur indiquée, il faudrait tenir compte de l'effet multiphononique parce qu'il donne une déviation systématique. Nous le jugeons raisonnable de poser :

$$\Delta_o = (8.6 \pm 0.1) ^\circ K \quad (38)$$

La même valeur s'obtiendrait à partir des nouvelles mesures de Passell (P2). A une pression $P = 1.03 \text{ atm.}$, il obtient la valeur suivante :

$$\Delta_o(P) = (8.52 \pm 0.08) ^\circ K \quad (39)$$

En extrapolant à zéro atmosphère :

$$\begin{aligned}\Delta_o(\dot{c}) &= \Delta_o(P) - \frac{\partial \Delta_o}{\partial \xi} \delta \xi \\ &= \Delta_o(P) - D \cdot \frac{\Delta_o}{\xi_o s^2} \delta P\end{aligned}$$

où (D1)

$$D \equiv \frac{\xi_o}{\Delta_o} \frac{\partial \Delta_o}{\partial \xi} = -0.94 \pm 0.05 \quad (40)$$

nous trouvons :

$$\Delta_o(0) = (8.61 \pm 0.09) ^\circ K$$

Passell n'a pas tenu compte non plus des effets multiphononiques, mais comme la résolution de ses mesures est meilleure (la largeur de raie est de l'ordre de $1 ^\circ K$), ils sont négligeables.

5. Effets de résonance

Dans la section 2, nous avons calculé la partie multiphononique de $S(k, \omega)$ à l'aide de l'approche des fonctions corrélées et trouvé un désaccord quantitatif entre la théorie et l'expérience, lequel devrait provenir du fait que nous avons négligé les éléments de matrice entre les états à deux phonons. La raison est que ces termes donnent lieu à des résonances. La possibilité de résonance a apparu déjà dans la section I.6. A part le spectre à un phonon ξ_q , une deuxième solution de l'équation à valeurs propres était possible à condition qu'il y ait deux points q et p (non-triviaux) qui satisfassent à la relation suivante :

$$\xi_q^F + \xi_{\vec{k}-\vec{q}}^F = \xi_p^F + \xi_{\vec{k}-\vec{p}}^F$$

(voir (I.66)). Cette égalité n'est en général pas satisfaite pour un réseau discret de vecteurs d'onde. Mais elle peut être approximativement satisfaite si, pour une certaine valeur E_k , la densité d'états

$$\rho_2^F(\vec{k}, E_k) \equiv \sum_{\vec{q}} \delta(E_k - \varepsilon_q^F - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}^F) \quad (41)$$

devient très grande. Cette valeur de E_k correspondrait alors à une résonance. Pour mieux voir la signification de ces résonances, nous reprenons l'équation de Schrödinger (I.28), mais essayons d'obtenir une approximation plus réaliste pour les éléments de matrice $h_{\vec{k}, \vec{q}}$ et $t_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}}$ que dans la section (I.6). Dans un contexte similaire, Iwamoto (I.1) a proposé la forme suivante :

$$\begin{aligned} h_{\vec{k}, \vec{q}} &= \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \gamma_3(k) g_k(q) \\ t_{\vec{k}, \vec{q}, \vec{l}} &= \frac{1}{\Omega} \gamma_4(k) g_k(q) g_k(l) \end{aligned} \quad (42)$$

A l'aide des expressions explicites dans l'approximation de convolution (formules (16) et (17) de l'appendice A), on s'aperçoit que la fonction $g_k(q)$ doit tendre vers zéro à l'endroit où $S_q \rightarrow 1$, c'est-à-dire pour $q \gtrsim 2.6 \text{ \AA}^{-1}$.

En insérant (42) dans les équations (I.28), on obtient, à l'aide de quelques transformations triviales, l'équation à valeurs propres suivante :

$$1 = \frac{1}{1 + \frac{\gamma_4(k)}{\gamma_3^2(k)} (E_k - \varepsilon_k^F)} + \frac{\gamma_4(k)}{2\Omega} \sum_{\vec{l}} \frac{g_k^2(l)}{E_k - \varepsilon_l^F - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}}^F} \quad (43)$$

où nous avons négligé la non-orthogonalité des états à deux phonons. Soit $E_k^{(1)}$ la solution de (43) qui correspond à la

renormalisation des états à un phonon. A l'aide du même argument que nous avons utilisé dans la section I.6, nous pourrions recalculer les éléments de matrice $h_{\vec{k},\vec{q}}$ et $t_{\vec{k},\vec{q},\vec{l}}$ dans les états renormalisés et faire de nouveau l'approximation (42). On retrouverait l'équation à valeurs propres (43), avec des grandeurs modifiées :

$$\begin{aligned}\varepsilon_k^F &\longrightarrow E_k^{(1)} \\ \gamma_3(k) &\longrightarrow \Gamma_3^{(1)}(k) \\ \gamma_4(k) &\longrightarrow \Gamma_4^{(1)}(k) \\ g_k(l) &\longrightarrow G_k^{(1)}(l)\end{aligned}\tag{44}$$

En répétant ce calcul une infinité de fois, on a, pourvu que le procédé converge :

$$\begin{aligned}\lim_{n \rightarrow \infty} E_k^{(n)} &= \varepsilon_k \\ \lim_{n \rightarrow \infty} \Gamma_3^{(n)}(k) &= 0 \\ \lim_{n \rightarrow \infty} \Gamma_4^{(n)}(k) &= \Gamma_4(k) \\ \lim_{n \rightarrow \infty} G_k^{(n)}(l) &= G_k(l)\end{aligned}\tag{45}$$

Dans cette limite, le premier terme dans (43) est zéro en dehors du pôle $E_k = \varepsilon_k$. Donc, pour $E_k \neq \varepsilon_k$ on obtient l'équation suivante :

$$1 = \frac{\Gamma_4(k)}{2\Omega} \sum_{\vec{l}} \frac{G_k^2(l)}{E_k - \varepsilon_l - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}}}\tag{46}$$

où $G_k(l)$ joue le rôle d'un cut-off et $\Gamma_4(k)$ correspond à l'interaction effective entre les vraies excitations. Cette relation est très similaire à l'équation (6.9) de la référence (E3).

On s'attend à des résonances partout où la densité d'états

$$\varrho_2(E_k) = \sum_{\vec{q}} \delta(E_k - \varepsilon_q - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}) \quad (47)$$

est grande. C'est le cas pour

$$E_k \approx \begin{cases} 2\Delta_0 \\ \Delta_0 + \Delta_1 \\ 2\Delta_1 \\ 4\Delta_0 \end{cases} \quad (48)$$

où les paramètres Δ_0 et Δ_1 sont les énergies du minimum et du premier maximum du spectre renormalisé, qui se situent à k_0 et k_1 , respectivement (voir fig. 4). A $E_k = \Delta_0 + \Delta_1$, $\varrho_2(E_k)$ a une singularité logarithmique pourvu que

$$k_0 - k_1 \leq k \leq k_0 + k_1$$

Ceci provient du point de selle de la fonction

$$\Delta_0 - \varepsilon_l + \Delta_1 - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{l}}$$

à $l = k_0$, $|\vec{k}-\vec{l}| = k_1$ (J1). La résonance à $4\Delta_0$ provient des excitations du plateau à $l \approx 3 \text{ \AA}^{-1}$.

La résonance à $2\Delta_0$ a été proposée et extensivement discutée par Ruvalds et Zawadowski (R5, Z1, S4) dans le cadre d'une

théorie phénoménologique. Si le couplage entre les rotons $\Gamma_4(k)$ est négatif, on peut avoir une solution de (46) pour une valeur de E_k légèrement en dessous de $2\Delta_0$. Ruvalds et Zawadowski ont interprété cette solution comme état lié de deux rotons, la différence

$$2\Delta_0 - E_k = E_k^B \quad (49)$$

représentant l'énergie de liaison. L'existence d'un état lié de deux rotons n'est ni confirmée ni désapprouvée par l'expérience (W3). D'autre part, Pitaevskii a remarqué (P7) que cet état n'est pas stable pour $k \lesssim 0.43 \text{ \AA}^{-1}$ parce qu'il pourrait se désintégrer en deux phonons de cette longueur d'onde.

Pour avoir une idée de l'amplitude de ces résonances, nous utilisons de nouveau l'approximation de Feynman-Cohen (26). On a :

$$S_{\perp}(k, E_k) \propto \sum_{\vec{l}} Z(l) Z(q) \left[\frac{\vec{k} \cdot \vec{l}}{l^2} + \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \right]^2 \delta(E_k - \varepsilon_l - \varepsilon_q) \quad (50)$$

où $\vec{q} \equiv \vec{k} - \vec{l}$

D'abord, on s'aperçoit que l'excitation de deux rotons est préférée à celle des "maxons" ou des "plavons" à cause des facteurs $Z(l)$, $Z(q)$ (voir fig. 2). Quant à la dépendance de k , il y a deux effets contraires. L'intensité augmente en fonction de k à cause du facteur

$$\left[\frac{\vec{k} \cdot \vec{l}}{l^2} + \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \right]^2$$

D'autre part, elle diminue, parce que l'espace de phase dans lequel

$$E_k - \varepsilon_l - \varepsilon_q \approx 0$$

représenté par le domaine hachuré de la fig. 5, devient plus petit si k augmente.

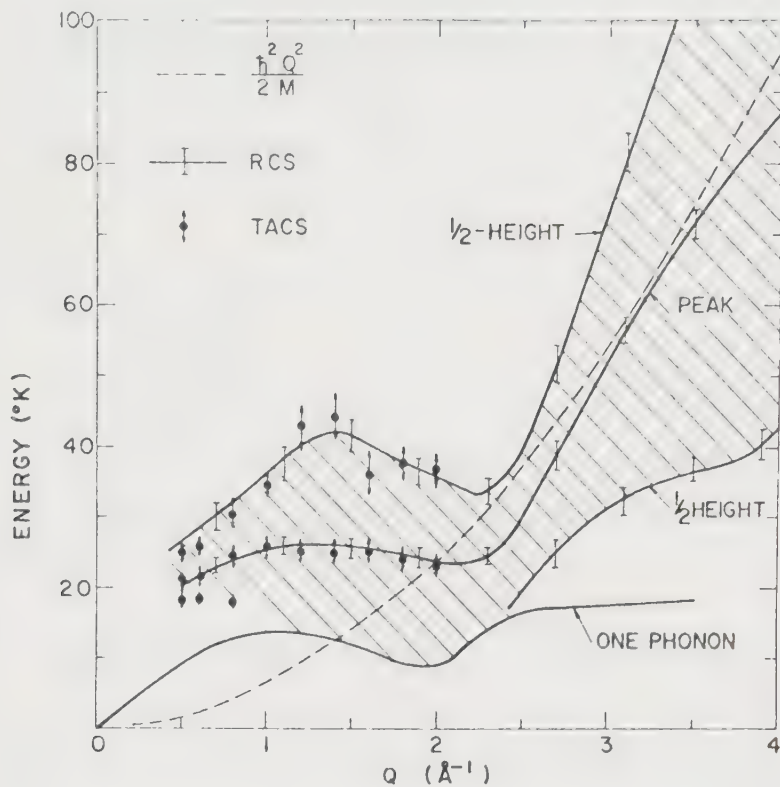


Fig. 4 : Intensité de la diffusion de neutron en fonction de q et ω (selon C7), mesurée avec deux types de spectromètres à $T = 1.1^{\circ}\text{K}$.

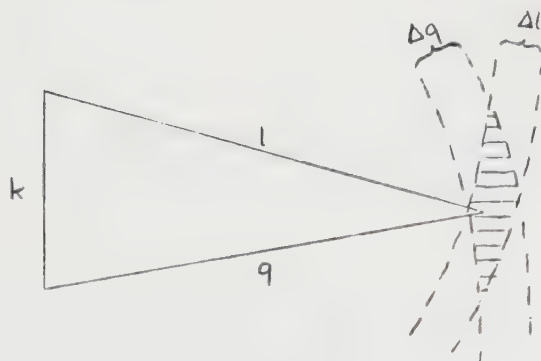


Fig. 5 : Espace de phase "important"

Les résonances que nous venons de discuter ont en général une partie imaginaire appréciable parce qu'elles apparaissent dans le spectre continu des multiphonons. La fonction $S_{II}(k, \omega)$ qui est la superposition de ces raies élargies a donc une forme lisse avec des maxima à l'endroit des résonances importantes. A petit k , la contribution principale devrait être la résonance à deux rotons ($E_k \approx 2 \Delta_0$) tandis que pour $1 \lesssim k \lesssim 3 \text{ \AA}^{-1}$, c'est la singularité logarithmique à $E_k \approx \Delta_0 + \Delta_1$ qui domine. Un comportement similaire se voit dans l'expérience (fig. 4). D'autre part, récemment, on a trouvé un maximum à $E_k \approx 40 \text{ }^\circ\text{K}$ (W4), ce qui pourrait correspondre à la résonance à $E_k \approx 4 \Delta_0$. Les expériences montrent aussi qu'il y a une intensité mesurable jusqu'à $70 \text{ }^\circ\text{K}$ laquelle provient des contributions à trois phonons. Mais on s'attend que la densité d'états à trois phonons

$$\varrho_3(k, \omega) \equiv \sum_{\vec{q}, \vec{l}} \delta(\omega - \varepsilon_l - \varepsilon_{\vec{q}+\vec{l}} - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}) = \sum_{\vec{q}} \varrho_2(\vec{q}, \omega - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}) \quad (51)$$

n'a pas de singularités spectaculaires de sorte qu'il n'y ait pas de résonances à des énergies supérieures à $4 \Delta_0$.

A grand q , la méthode présentée ici n'est plus valable parce que les états phononiques sont une mauvaise représentation du mouvement individuel des atomes. Pour ce domaine de q , il faudrait aller bien au-delà de l'approximation de Tamm-Dancoff. Il est donc préférable de faire une description en termes d'atomes, par exemple sous la forme de l'approximation d'impulsion telle qu'elle a été présentée par Sears (S1, S2) ou en calculant la fonction de réponse à une particule comme l'a fait Enz (E3, E4).

Mentionnons encore qu'à part la théorie (très qualitative) d'Iwamoto (I1) et les travaux d'Enz, la question de la deuxième branche a été discutée très récemment par Kebukawa et al. (K2). Ces derniers discutent la possibilité de solutions additionnelles

de l'équation (I.53). Ce procédé ne nous semble pas approprié au problème puisque les éléments de matrice entre les états à deux phonons qui, dans notre analyse, se révélaient très importants pour l'étude des résonances, sont négligés.

CHAPITRE III

THEORIE GENERALE DE LA DIFFUSION DE LUMIERE DANS LES LIQUIDES DIELECTRIQUES

INTRODUCTION

Il y a un siècle, Lord Rayleigh a publié sa théorie de la diffusion de lumière par des petites sphères diélectriques (R2). Avec sa fameuse loi selon laquelle l'intensité de la lumière diffusée est proportionnelle à la quatrième puissance de la fréquence, il réussit à expliquer le bleu du ciel. Cependant, la validité de sa théorie est limitée aux gaz dilués. La généralisation pour des milieux denses a été faite par Smoluchowski (S3) et Einstein (E2) qui ont montré que la diffusion est provoquée par les fluctuations de la constante diélectrique. Un peu plus tard, Brillouin a prédit dans sa thèse (B9, B10) que les fluctuations importantes correspondent à des ondes élastiques qui se propagent dans le système. Par effet Doppler, la fréquence de la lumière diffusée dans un angle ϑ est déplacée par rapport à celle de la lumière incidente ν_0 de

$$\Delta \nu = \pm 2 \frac{v}{c} \nu_0 \sin \frac{\vartheta}{2}$$

où v est la vitesse du son et c la vitesse de la lumière. Avant que ces raies de Brillouin aient été vérifiées expérimentalement par Gross (G8), des mesures par Raman (R1) et par Landsberg et Mandelstam (L5) ont montré des raies beaucoup plus déplacées qui proviennent de changements dans l'état interne des molécules ou, dans le cas des solides, des phonons optiques. D'autre part, il existe aussi une raie centrale due aux fluctuations d'entropie.

Le rapport entre son intensité et celle de la diffusion de Brillouin est donné par le rapport des chaleurs spécifiques

$$\frac{C_P}{C_V} - 1$$

pourvu qu'on néglige la dépendance en température de la constante diélectrique (L4). L'intensité de la raie centrale augmente fortement au voisinage d'une transition de phase (opalescence critique).

L'avènement du laser et le raffinement des spectromètres dans les années soixante a ouvert de nouveaux domaines aux expérimentateurs (voir les comptes rendus des deux conférences sur la diffusion de la lumière dans les solides L8, L9). Citons le Prof. Balkanski (remarques conclusives à l'occasion de la conférence de Paris, 1971) :

"Only five years ago there were few adepts of light scattering as a tool of investigation in solid state physics, today there are few solid state Physicists who are not touched by the grace of light scattering."

Dans ce chapitre, nous traiterons la théorie de la diffusion de lumière dans des liquides non-polaires en nous limitant aux fluctuations de densité (de premier et deuxième ordre). La présentation s'inspire des travaux de Komarov et Fisher (K3) et de Stephen (S6) sans les suivre dans les détails.

1. Définition du coefficient différentiel de diffusion

Dans une expérience de diffusion un pulse de la forme

$$\vec{E}_o(\vec{r}, t) = \begin{cases} \vec{E}_o e^{i(\vec{k}_o \cdot \vec{r} - \omega_o t)} & |t| < \tau \\ 0 & |t| > \tau \end{cases} \quad (1)$$

est envoyé à travers un échantillon de volume Ω et la lumière diffusée est détectée par un spectromètre à une distance R qui est grande par rapport aux dimensions du spécimen (fig. 1). Le flux d'énergie à l'endroit du compteur est donné par le vecteur de Poynting

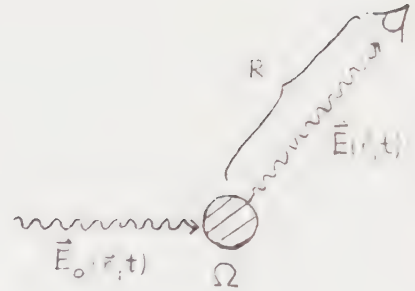


Fig. 1 : Expérience de diffusion

$$\vec{S}(\vec{R}, t) = \frac{1}{4\pi} (\vec{E} \times \vec{H})(\vec{R}, t) = \frac{1}{8\pi} |\vec{E}(\vec{R}, t)|^2 \hat{R} \quad (2)$$

Le signal mesuré représente la moyenne temporelle par rapport à l'onde incidente et la moyenne statistique par rapport aux fluctuations du système :

$$\begin{aligned} \langle |\vec{E}(\vec{R}, t)|^2 \rangle &= \frac{1}{2\tau} \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\tau}^{\tau} dt \int d\omega \, d\omega' \langle \vec{E}^*(\vec{R}, \omega) \vec{E}(\vec{R}, \omega') \rangle e^{i(\omega - \omega')t} \\ &\underset{\tau \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{4\pi\tau} \int d\omega \langle |\vec{E}(\vec{R}, \omega)|^2 \rangle \end{aligned} \quad (3)$$

L'intensité de la lumière émise par angle solide et unité de volume dans la direction $\hat{R}$ avec une fréquence ω et une polarisation ξ est alors donnée par

$$I_{\xi}(\hat{R}, \omega) = \frac{R^2}{\Omega} \frac{1}{(4\pi)^2 2\tau} \langle |E_{\xi}(\vec{R}, \omega)|^2 \rangle \quad (4)$$

Le coefficient différentiel de diffusion $h_{\xi}(\hat{R}, \omega)$ est défini par

$$h_{\xi}(\hat{R}, \omega) = \frac{I_{\xi}(\hat{R}, \omega)}{I_0} \quad (5)$$

où I_0 est l'intensité de la lumière incidente :

$$I_0 = \frac{1}{8\pi} |\epsilon_0|^2 \quad (6)$$

En d'autres termes, le coefficient différentiel de diffusion est l'amplitude de probabilité qu'un photon qui traverse une unité de chemin dans le liquide soit diffusé en créant un photon d'énergie ω et de polarisation ϵ par unité d'angle solide dans la direction $\hat{R}$.

A l'aide de (4), (5) et (6), on a :

$$\gamma_\epsilon(\hat{R}, \omega) = \frac{R^2}{\Omega} \frac{1}{4\pi\tau |\epsilon_0|^2} \langle |E_\epsilon(\vec{R}, \omega)|^2 \rangle \quad (7)$$

2. Dérivation de l'équation intégrale pour le champ électrique effectif.

Dans cette section, nous suivrons essentiellement l'approche de Komarov et Fisher (K3, voir aussi E7). Pour une substance non-magnétique, en absence de charges et courants, les équations de Maxwell ont la forme suivante ($c = 1$) :

$$\begin{aligned} \text{div } \vec{D} &= 0 \\ \text{rot } \vec{H} - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} &= 0 \\ \text{div } \vec{H} &= 0 \\ \text{rot } \vec{E} + \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} &= 0 \end{aligned} \quad (8)$$

La densité de polarisation $\vec{P}$ est définie par

$$\vec{D} = \vec{E} + \vec{P} \quad (9)$$

Cette convention diffère d'un facteur 4π de celle utilisée par Jackson (J5), mais correspond à celle choisie par Rosenfeld (R4) et Mazur (B3).

A l'aide des potentiels $\vec{A}$ et φ reliés aux champs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ par :

$$\begin{aligned}\vec{H} &= \text{rot } \vec{A} \\ \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} - \text{grad } \varphi\end{aligned}\tag{10}$$

les deux dernières relations dans (8) sont automatiquement satisfaites. Les deux premières s'écrivent de la manière suivante :

$$\begin{aligned}\Delta \varphi - \frac{\partial^2}{\partial t^2} \varphi &= \text{div } \vec{P} \\ \Delta \vec{A} - \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{A} &= -\frac{\partial}{\partial t} \vec{P}\end{aligned}\tag{11}$$

où nous avons utilisé la jauge de Lorentz :

$$\text{div } \vec{A} + \frac{\partial \varphi}{\partial t} = 0\tag{12}$$

On a donc des équations d'onde inhomogènes. Introduisons encore le vecteur de Hertz $\vec{\Pi}$ en définissant :

$$\vec{A} \equiv \dot{\vec{\Pi}}\tag{13}$$

Alors la deuxième des équations (11) devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\Delta \vec{\Pi} - \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{\Pi} \right) = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{P}\tag{14}$$

et la jauge de Lorentz a la forme suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\text{div } \vec{\Pi} + \varphi \right) = 0\tag{15}$$

d'où

$$\Delta \vec{\Pi} - \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{\Pi} = -\vec{P} + \vec{f}_1(\vec{r})$$

$$\text{div } \vec{\Pi} + \psi = f_2(\vec{r}) \quad (16)$$

Nous choisissons pour le vecteur de Hertz la jauge où $\vec{f}_1(\vec{r})$, $f_2(\vec{r})$ sont des constantes. Nous pouvons les poser égales à zéro puisque les grandeurs physiques $\vec{E}$ et $\vec{H}$ n'en dépendent point. Donc on a :

$$\Delta \vec{\Pi} - \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{\Pi} = -\vec{P}$$

$$\psi = -\text{div } \vec{\Pi} \quad (17)$$

A l'aide de (10) nous obtenons :

$$\vec{E} = -\frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{\Pi} + \text{grad } \text{div } \vec{\Pi} \quad (18)$$

La solution de l'équation d'onde (17) satisfaisant aux contraintes physiques est bien connue (voir chapitre 6 de J5) :

$$\vec{\Pi}(\vec{x}, t) = \vec{\Pi}_0(\vec{x}, t) + \frac{1}{4\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \int_{\Omega} d\vec{x}' \frac{\delta(t-t+|\vec{x}-\vec{x}'|)}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \vec{P}(\vec{x}', t') \quad (19)$$

où $\vec{\Pi}_0$ est la solution générale de l'équation homogène. Dans notre problème de diffusion $\vec{\Pi}_0$ correspond au champ extérieur $\vec{E}_0$. Le deuxième terme du membre de droite représente une onde sphérique sortante qui satisfait à la condition de causalité, c'est-à-dire : seulement des temps

$$t' < t$$

contribuent à l'onde diffusée.

Donc, l'équation (19) satisfait aux conditions physiques imposées par la situation expérimentale. En utilisant la représentation

$$\phi(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{i\omega t}$$

et la relation (18) nous obtenons l'équation intégrale suivante pour le champ électrique :

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \vec{E}_0(\vec{x}, t) + \frac{1}{8\pi^2} \int d\omega e^{-i\omega t} \int_{\Omega} d^3x' \left(\omega^2 + \text{grad}_{\vec{x}} \cdot \text{grad}_{\vec{x}'} \right) \frac{e^{i\omega(t' + |\vec{x} - \vec{x}'|)}}{|\vec{x} - \vec{x}'|} \vec{P}(\vec{x}', t') \quad (20)$$

Cette équation a la forme générale suivante :

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \vec{E}_0(\vec{x}, t) + \int_{\Omega} d^3x' \int dt' \vec{F}(\vec{x} - \vec{x}', t - t') \vec{P}(\vec{x}', t') \quad (21)$$

ou en transformée de Fourier :

$$\vec{E}(\vec{x}, \omega) = \vec{E}_0(\vec{x}, \omega) + \int dt' e^{i\omega t'} \int_{\Omega} d^3x' \vec{F}(\vec{x} - \vec{x}', \omega) \vec{P}(\vec{x}', t') \quad (22)$$

Le propagateur $\vec{F}$ est évalué dans l'appendice E. Dans la zone d'ondes ($\vec{x} = \vec{R}$, $\omega R \gg 1$) on obtient :

$$\vec{E}(\vec{R}, \omega) = \vec{E}_0(\vec{R}, \omega) + \frac{1}{4\pi} \omega^2 \frac{e^{i\omega R}}{R} (1 - \hat{R} \hat{R}) \int dt' e^{i\omega t'} \int d^3x' e^{-i\vec{R} \cdot \vec{x}'} \vec{P}(\vec{x}', t') \quad (23)$$

où on a fait l'approximation suivante :

$$|\vec{R} \cdot \vec{x}'| \approx R - \vec{x}' \cdot \hat{R} \equiv R - \hat{k} \cdot \vec{x}'$$

($\vec{k}$ est le vecteur d'onde de la lumière diffusée).

3. Modèle simple de dipôles ponctuels. Diffusion du premier ordre (diffusion de Brillouin).

Il est bien connu (voir par exemple R4, Z2, F7) qu'une molécule non-polaire acquiert sous l'influence d'un champ électrique $\vec{E}$ un moment dipolaire qui est proportionnel au champ :

$$\vec{P} = \alpha_0 \vec{E} \quad (24)$$

Si le champ oscille à une fréquence ω , cette relation reste valide, mais la polarisabilité α_0 dépend en général de ω , donnant lieu à des phénomènes d'absorption et de dispersion. Cependant, ces effets sont négligeables si ω est petit par rapport aux énergies de transition entre les états stationnaires de la molécule. Nous supposons que c'est le cas, donc que α_0 est réel et indépendant de ω .

Supposons aussi que les moments dipolaires soient situés aux centres des molécules, donc que la densité de polarisation $\vec{P}$ soit donnée par

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_i \vec{p}_i(t) \delta(\vec{r} - \vec{r}_i(t)) \quad (25)$$

En premier ordre des fluctuations de densité on obtient :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) \approx \alpha_0 \zeta(\vec{r}, t) \vec{E}_0(\vec{r}, t)$$

d'où, à l'aide de (23), (1) et la transformée de Fourier de l'opérateur de densité (I.5) :

$$E_{\epsilon}^{(1)}(\vec{R}, \omega) = \frac{\alpha_0}{4\pi} \omega^2 \frac{e^{i\omega R}}{R} \vec{E}_{0\perp} \cdot \hat{\epsilon} \int_{-\tau}^{\tau} dt e^{i(\omega - \omega_0)t} \zeta_{\vec{k}-\vec{k}_0}(t) \quad (26)$$

où

$$\vec{E}_{0\perp} \equiv (1 - \hat{R}\hat{R}) \vec{E}_0$$

Alors, à l'aide de (7) :

$$h_{\varepsilon}^{(1)}(\hat{R}, \omega) = \left(\frac{\alpha_0}{4\pi}\right)^2 \omega^4 \left| \hat{\varepsilon}_{0,1} \cdot \hat{\varepsilon} \right|^2 \varepsilon_0 S(\vec{k}_0 - \vec{k}, \omega_0 - \omega) \quad (27)$$

où nous avons utilisé la définition du facteur de structure (II.4) et l'homogénéité dans le temps des fonctions de corrélation :

$$\langle A(t) B(t') \rangle = \langle A(t-t') B(0) \rangle \quad (28)$$

Dans une expérience de diffusion de Brillouin, le transfert d'énergie qui est de l'ordre de mK est en général petit par rapport à la température. Alors, le coefficient total de diffusion s'obtient à l'aide de la règle de somme de compressibilité (voir par exemple E7) :

$$\lim_{k \rightarrow 0} \int_0^{\infty} S(k, \omega) d\omega = \varepsilon_0 k_B T \kappa_T$$

où κ_T est la compressibilité isotherme. Celle-ci, en négligeant l'expansion thermique, s'écrit de la manière suivante :

$$\kappa_T \equiv -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right)_T = \frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{\partial \varepsilon_0}{\partial P} \right)_T \approx \frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{\partial \varepsilon_0}{\partial P} \right)_S = \frac{1}{m \varepsilon_0} \frac{1}{S^2} \quad (29)$$

où S est l'entropie du système, s est la vitesse du son adiabatique et m est la masse d'une molécule. Pour un diélectrique, la polarisabilité α_0 est reliée au coefficient de réfraction n par la formule de Lorentz-Lorenz (voir par exemple R4) :

$$\frac{1}{3} \alpha_0 = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \quad (30)$$

Il faut encore intégrer (27) sur les angles et sommer sur les deux directions de polarisation $\hat{\varepsilon}$:

$$\sum_{\vec{\epsilon}} \int |\vec{\epsilon}_{o\perp} \cdot \vec{\epsilon}|^2 d\Omega = \int |\vec{\epsilon}_{o\perp}|^2 d\Omega = \int \sin^2 \vartheta d\Omega = \frac{8\pi}{3} \quad (31)$$

(voir fig. 2).



Fig. 2

A l'aide des équations (27) à (31), on obtient l'expression suivante pour le coefficient total de diffusion :

$$h^{(1)} = \frac{3}{2\pi} \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2 \omega_o^4 \frac{\rho_o k_B T}{m s^2} \quad (32)$$

Cette formule est bien connue. Elle a été confirmée par l'expérience (voir par exemple G7), au moins pour des domaines de températures où l'expansion thermique est petite.

4. Le processus de la diffusion du deuxième ordre

Dans le modèle de dipôles ponctuels (équations (24) et (25)), la densité de polarisation $\vec{P}(\vec{x}, t)$ est reliée au champ effectif dans le liquide par :

$$\vec{P}(\vec{x}, t) = \alpha_o \rho(\vec{x}, t) \vec{E}(\vec{x}, t) \quad (33)$$

En insérant cet Ansatz dans (21), on obtient une équation intégrale qui peut être résolue par itération. Elle décrit à la fois la propagation du faisceau à travers le milieu (dans la direction du champ incident s'il n'y a pas d'effets de réfraction à la surface) et la diffusion provenant des fluctuations de polarisation. En itérant une fois, il vient :

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{x}, t) = & \vec{E}_0(\vec{x}, t) + \alpha_0 \int dt' \int d^3x' \vec{F}(\vec{x}-\vec{x}', t-t') \varrho(\vec{x}', t') \vec{E}_0(\vec{x}', t') \\ & + \alpha_0 \int dt' \int d^3x' \vec{F}(\vec{x}-\vec{x}', t-t') \varrho(\vec{x}', t') \int dt'' \int d^3x'' \vec{F}(\vec{x}'-\vec{x}'', t'-t'') \vec{P}(\vec{x}'', t'') \end{aligned} \quad (34)$$

Le terme de premier ordre donne lieu à la diffusion de Brillouin que nous avons traitée dans la section précédente. Le terme du deuxième ordre est la superposition de toutes les perturbations induites en $\vec{x}', t'$, par le champ dipolaire provenant des molécules en $\vec{x}'', t''$. Si $\vec{x}$ ne se trouve pas sur la ligne de propagation du faisceau, il y aura en général interférence destructive, sauf si les fluctuations en $\vec{x}'$ et $\vec{x}''$ sont corrélées. Comme il existe un ordre à courte portée dans les liquides, les contributions significatives à la diffusion du deuxième ordre proviennent des domaines où $|\vec{x}'-\vec{x}''|$ est de l'ordre de la distance interatomique.

L'expression (34) est exacte. En approximant

$$\vec{P}(\vec{x}'', t'') \approx \alpha_0 \varrho(\vec{x}'', t'') \vec{E}_0(\vec{x}'', t'')$$

on obtient le champ effectif du deuxième ordre dans les fluctuations de densité. La forme explicite de la contribution du deuxième ordre dans la zone d'onde s'obtient à l'aide de (34) et (E.3) :

$$\begin{aligned} \vec{E}^{(2)}(\vec{R}, \omega) &= \frac{1}{4\pi} \omega^2 \frac{e^{i\omega R}}{R} (1 - \hat{R}\hat{R}) \alpha_0^2 \\ &\times \int dt' e^{i\omega t'} \int d^3x' e^{-i\vec{k}\vec{x}'} \zeta(\vec{x}', t') \\ &\times \int dt'' \int d^3x'' \vec{F}(\vec{x}' - \vec{x}'', t' - t'') \zeta(\vec{x}'', t'') \vec{E}_0(\vec{x}'', t'') \end{aligned} \quad (35)$$

En tenant compte du fait que les contributions importantes proviennent des domaines où $|\vec{x}' - \vec{x}''|$ est de l'ordre de la distance intermoléculaire, nous pouvons utiliser l'approximation suivante (voir appendice E) :

$$\vec{F}(\vec{x}' - \vec{x}'', t' - t'') \approx \frac{1}{4\pi} \vec{F}_{\text{dip}}(\vec{x}' - \vec{x}'') \delta(t' - t'')$$

où

$$\vec{F}_{\text{dip}}(\vec{x}) \equiv \frac{1}{x^3} (3\hat{x}\hat{x} - \mathbb{1}) \quad (36)$$

Alors on obtient à l'aide de (1) :

$$\begin{aligned} \vec{E}^{(2)}(\vec{R}, \omega) &= \left(\frac{\alpha_0 \omega}{4\pi} \right)^2 \frac{e^{i\omega R}}{R} (1 - \hat{R}\hat{R}) \\ &\times \int_{-\tau}^{\tau} dt' \int_{\Omega} d^3x' e^{i(\omega - \omega_0)t'} e^{-i\vec{k}\vec{x}'} \zeta(\vec{x}', t') \\ &\times \int_{\Omega} d^3x'' \vec{F}_{\text{dip}}(\vec{x}' - \vec{x}'') \vec{E}_0 e^{i\vec{k}_0 \vec{x}''} \zeta(\vec{x}'', t'') \end{aligned} \quad (37)$$

Il y a une contrainte physique qui s'impose. Comme une molécule (considérée ici comme particule élémentaire) ne peut pas se polariser elle-même, il faut exclure un certain domaine de l'intégration. Si d est le rayon du coeur dur d'une molécule se trouvant à $\vec{x}'$, les autres se trouvent au moins à une distance $2d$ de $\vec{x}'$. Donc il faut exclure une sphère de rayon $2d$ de l'intégration, ce qui est équivalent à multiplier $\vec{F}_{\text{dip}}(\vec{x}' - \vec{x}'')$ par la fonction de Heavyside

$$\Theta(|\vec{x}' - \vec{x}''| - 2d) = \begin{cases} 0, & |\vec{x}' - \vec{x}''| < 2d \\ 1, & |\vec{x}' - \vec{x}''| > 2d \end{cases} \quad (38)$$

Une analyse plus détaillée de ce point est donnée dans la référence B3. Cependant, il faudrait aussi tenir compte du fait que $\vec{\vec{F}}_{\text{dip}}(\vec{x}' - \vec{x}'')$ est une mauvaise approximation pour l'interaction électromagnétique dès que deux molécules se rapprochent. C'est pourquoi nous multiplions le propagateur par un facteur de forme $g(\vec{x}' - \vec{x}'')$ qui a le comportement qualitatif de la figure 3 et définissons le propagateur "amolli" :

$$\vec{\vec{G}}(\vec{r}) \equiv g(r) \vec{\vec{F}}_{\text{dip}}(\vec{r}) \quad (39)$$

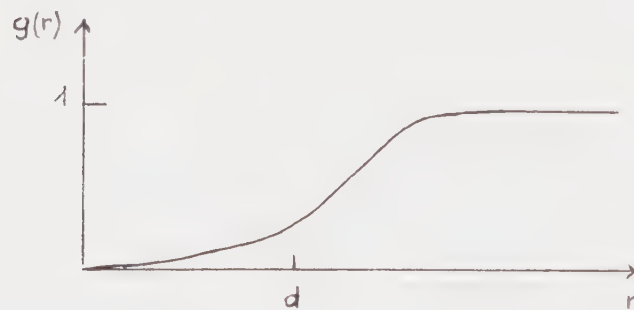


Fig. 3

La forme la plus simple d'une fonction continue qui satisfait aux conditions asymptotiques :

$$g(r) \sim \begin{cases} 1 & r \rightarrow \infty \\ 0 & r \rightarrow 0 \end{cases}$$

est la suivante :

$$g(r) = 1 - e^{-\lambda r} \quad (40)$$

La constante λ doit être de l'ordre $\frac{1}{d}$. Cette fonction est préférable à un cut-off non seulement parce qu'elle devrait mieux représenter la réalité physique, mais aussi, parce que sa transformée de Fourier ne dépend pas fortement du choix du paramètre λ , tandis que la fonction de Heavyside (38) a une transformée de Fourier qui dépend fortement du choix de d , en tout cas pour des valeurs $q \sim \frac{1}{d}$. Mais c'est justement ces valeurs qui contribuent le plus au processus de diffusion du deuxième ordre. La raison est que le propagateur $\vec{F}(\vec{r})$ décroît fortement avec r de sorte que c'est surtout les molécules voisines qui contribuent au champ dipolaire.

Remarque : Dans la référence B1, la fonction de distribution de paires a été choisie comme facteur de forme. Tandis que cette fonction représente bien un cut-off correspondant au coeur dur, elle ne peut pas être justifiée rigoureusement. Il serait même difficile de concevoir qu'un tel choix décrive correctement les corrélations (C5). C'est pourquoi nous abandonnons ici ce choix à la faveur de la forme (40).

5. Le coefficient différentiel de diffusion du deuxième ordre. Termes d'interférence.

En insérant les transformées de Fourier

$$\xi(\vec{x}, t) = \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{x}} \xi_{\vec{k}}(t)$$

dans (37) et en remplaçant le propagateur $\vec{F}_{\text{dip}}$ par $\vec{G}$ ((39) avec le facteur de forme (40)), nous obtenons la forme suivante pour le champ diffusé du deuxième ordre :

$$\vec{E}^{(2)}(\vec{R}, \omega) = \left(\frac{\alpha_{\omega}}{4\pi} \right)^2 \frac{e^{i\omega R}}{R} \int_{-\tau}^{\tau} dt e^{i(\omega - \omega_0)t} \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{q}} \vec{y}(\vec{q}) \xi_{\vec{k}-\vec{q}}(t) \xi_{\vec{q}-\vec{k}_0}(t) \quad (41)$$

où

$$\vec{\gamma}(\vec{q}) \equiv (1 - \hat{R}\hat{R}) \vec{G}(\vec{q}) \vec{\varepsilon}_c \quad (42)$$

Le tenseur $\vec{G}(\vec{q})$ est calculé dans l'appendice E.2 :

$$\vec{G}(\vec{q}) = -4\pi (3\hat{q}\hat{q} - 1) f(q) \quad (43)$$

où

$$f(q) \equiv \int_0^\infty \frac{dx}{x} (1 - e^{-\lambda x}) j_2(qx) \quad (44)$$

Le coefficient de diffusion (7) se décompose alors en trois parties :

$$h_\varepsilon(\hat{R}, \omega) = h_\varepsilon^{(1)}(\hat{R}, \omega) + h_\varepsilon^{(12)}(\hat{R}, \omega) + h_\varepsilon^{(2)}(\hat{R}, \omega) \quad (45)$$

où $h_\varepsilon^{(1)}(\hat{R}, \omega)$ correspond à la diffusion de Brillouin (27), $h_\varepsilon^{(2)}(\hat{R}, \omega)$ est la contribution du deuxième ordre et $h_\varepsilon^{(1,2)}(\hat{R}, \omega)$ représente l'interférence entre les fluctuations du premier et du deuxième ordre.

En utilisant l'homogénéité dans le temps (28), il vient

$$h_\varepsilon^{(2)}(\hat{R}, \omega) = \left(\frac{\alpha_0 \omega}{4\pi}\right)^4 \frac{1}{2\pi |\varepsilon_0|^2} \varepsilon_0^3 \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} \gamma_\varepsilon^*(\vec{q}) \gamma_\varepsilon(\vec{q}') S_4(\vec{c} \cdot \vec{k}, \vec{k}_0 - \vec{q}, \vec{k} - \vec{q}', \omega_0 - \omega) \quad (46)$$

où

$$S_4(\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3, \omega) \equiv \frac{1}{N^3} \int dt e^{i\omega t} \langle \varphi_{\vec{k}_1}(t) \varphi_{\vec{k}_2}(t) \varphi_{\vec{k}_3} \varphi_{-(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_3)} \rangle \quad (47)$$

Le terme d'interférence s'obtient à l'aide de (26) et de (41). On obtient :

$$h_\varepsilon^{(12)}(\hat{R}, \omega) = \left(\frac{\alpha_0}{4\pi}\right)^3 \omega^4 \varepsilon_0^2 \frac{1}{\pi} \operatorname{Re} \left\{ \left(\hat{\varepsilon}_{c1} \cdot \hat{\varepsilon} \right)^* \sum_{\vec{q}} \frac{\gamma_\varepsilon(\vec{q})}{\varepsilon} S_4(\vec{k}_0 - \vec{k}, \vec{k} - \vec{q}; \omega_0 - \omega) \right\} \quad (48)$$

où

$$S_3(\vec{k}_1, \vec{k}_2, \omega) \equiv \frac{1}{N^2} \int dt e^{i\omega t} \langle \rho_{\vec{k}_1}(t) \rho_{\vec{k}_2} \rho_{-(\vec{k}_1 + \vec{k}_2)} \rangle \quad (49)$$

Le problème est donc ramené à l'évaluation des fonctions de corrélations de densité. C'est en général une tâche très difficile. Nous essayerons dans le chapitre prochain de l'accomplir approximativement dans le cas de l'hélium superfluide à température zéro.

CHAPITRE IV

LA DIFFUSION DE RAMAN DANS L'HELIUM LIQUIDE

INTRODUCTION

Dans les chapitres précédents, nous avons vu que la dynamique d'un système de bosons en interaction peut être décrite en termes de fluctuations de densité et que ces dernières peuvent être étudiées à l'aide de la diffusion de neutrons et de la lumière. Dans les deux cas, la section efficace est proportionnelle à des fonctions de corrélation de densité. L'utilisation de la diffusion de lumière est limitée parce que d'une part, l'impulsion transférée au liquide par un photon du spectre visible est seulement de l'ordre $10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ et que d'autre part, une résolution fine du spectre diffusé de rayons plus durs (tels que les rayons X) n'est pas réalisable expérimentalement. A cause de la conservation d'impulsion, la diffusion de lumière du premier ordre permet d'étudier seulement des excitations de très longue longueur d'onde, en particulier le premier et le deuxième son (P4, W2). C'était Woods Halley (H1) qui s'apercevait qu'au deuxième ordre, cette restriction est éliminée par le fait que deux excitations d'impulsion pratiquement opposées sont créées dans le liquide.

La section efficace du deuxième ordre est proportionnelle à la densité d'états à deux phonons

$$\mathcal{S}_2(\Delta \vec{k}, \Delta \omega) = \sum_{\vec{q}} \delta(\Delta \omega - \epsilon_q - \epsilon_{|\Delta \vec{k} - \vec{q}|})$$

où

$$\Delta \omega = \omega_0 - \omega$$

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}_c - \vec{k}$$

Les contributions dominantes à cette fonction proviennent des régions q où le spectre d'excitation a une pente zéro, c'est-à-dire de la région des maxons et des rotons (voir fig. 1).

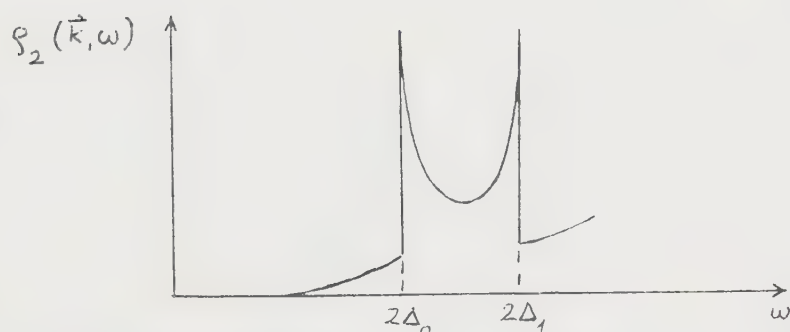


Fig. 1 : Densité d'états à deux phonons pour $k \approx 0$.

Les prédictions de Woods Halley ont été confirmées qualitativement par les expériences de Greytak et Yan (G4), lesquelles, par la suite, ont stimulé un certain nombre de théoriciens. Le but principal de ce chapitre est d'expliquer ces expériences.

1. Intensités relatives des différentes contributions.

Au deuxième ordre, le coefficient de diffusion est donné par l'expression suivante :

$$h_{\varepsilon}(\hat{R}, \omega) = h_{\varepsilon}^{(1)}(\hat{R}, \omega) + h_{\varepsilon}^{(12)}(\hat{R}, \omega) + h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{R}, \omega) \quad (2)$$

où les différentes contributions, définies par les relations (III.27), (III.46) et (III.48), sont proportionnelles à des fonctions de corrélation de densité. Pour relier les opérateurs de densité aux excitations élémentaires du système, nous utili-

sons le développement en série (II.20) :

$$S_{\vec{k}}^{\dagger} = \sigma_{\vec{k}} (\alpha_{-\vec{k}} + \alpha_{\vec{k}}^{\dagger}) + \frac{1}{2} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} \tau_{\vec{k}, \vec{q}} (\alpha_{-\vec{q}} + \alpha_{\vec{q}}^{\dagger}) (\alpha_{-\vec{k}+\vec{q}} + \alpha_{\vec{k}-\vec{q}}^{\dagger}) \quad (3)$$

où $\sigma_{\vec{k}}$ est donné par (II.24) :

$$\sigma_{\vec{k}} = \sqrt{N Z(k)} \quad (4)$$

Nous avons estimé les coefficients $\tau_{\vec{k}, \vec{q}}$ à l'aide de l'approximation de Feynman-Cohen (II.26) :

$$\tau_{\vec{k}, \vec{q}} = -8\pi A \varrho_c \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \sqrt{Z(q) Z(\vec{k} \cdot \vec{q})} \quad (5)$$

Calculons maintenant les différentes contributions de (2). Le premier ordre est proportionnel au facteur de structure dynamique $S(\Delta k, \Delta \omega)$ que nous avons discuté en détail dans le deuxième chapitre. C'est la partie multiphononique qui contribue au spectre de Raman. A l'aide de (III.27), on obtient :

$$h_{\varepsilon}^{(1)}(\hat{R}, \omega)_{\text{Raman}} = \left(\frac{\alpha_c}{4\pi} \right)^2 \omega^4 \left| \hat{\varepsilon}_{\text{oi}} \cdot \hat{\varepsilon} \right|^2 \varrho_c S_{\text{II}}(\Delta k, \Delta \omega) \quad (6)$$

Pour évaluer les autres contributions au coefficient de diffusion (2), il faut calculer la fonction (III.42)

$$\gamma_{\varepsilon}(\vec{q}) = \hat{\varepsilon} \cdot (1 - \hat{R} \hat{R}) \vec{G}(\vec{q}) \vec{\varepsilon}_0 \quad (7)$$

où

$$\vec{G}(\vec{q}) = -4\pi (3\hat{q}\hat{q} - 1) f(q) \quad (8)$$

La géométrie que l'on utilise habituellement dans les expériences de diffusion de lumière est celle indiquée dans la figure 2.

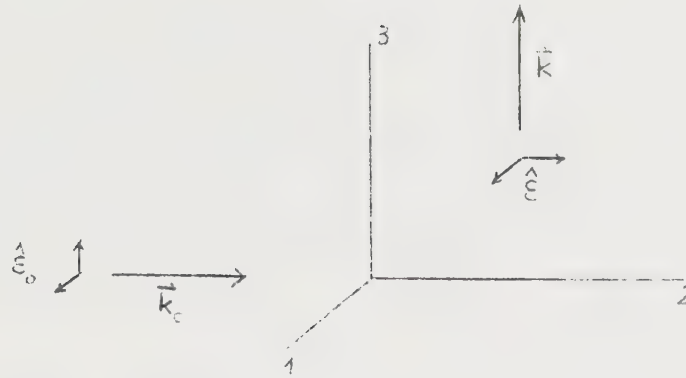


Fig. 2 : Disposition expérimentale

La lumière incidente, polarisée dans la direction 1 ou 3, se propage le long de l'axe 2. La lumière diffusée, polarisée dans la direction 1 ou 2, est mesurée le long de l'axe 3. Alors on a :

$$\hat{\epsilon} = (\mathbb{1} - \hat{R}\hat{R})(3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})\hat{\epsilon}_0 = \begin{cases} (3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})_{ij} & i = 1, 3, j = 1, 2 \\ 0 & \text{autrement} \end{cases} \quad (9)$$

L'indice i correspond à la polarisation de la lumière incidente, j à celle de la lumière diffusée. Les coefficients $(3\hat{q}\hat{q} - \frac{1}{3}\mathbb{1})_{ij}$ dépendent linéairement des harmoniques sphériques (voir appendice E.2) :

$$(3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})_{ij} = \sum_m \beta_m^{ij} Y_2^m(\Omega_{\hat{q}}) \quad (10)$$

en particulier :

$$\begin{aligned} (3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})_{11} &= -\sqrt{\frac{4\pi}{5}} Y_2^0 + \sqrt{\frac{6\pi}{5}} (Y_2^2 + Y_2^{-2}) \\ (3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})_{12} &= -i\sqrt{\frac{6\pi}{5}} (Y_2^2 - Y_2^{-2}) \\ (3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})_{31} &= \sqrt{\frac{6\pi}{5}} (-Y_2^1 + Y_2^{-1}) \\ (3\hat{q}\hat{q} - \mathbb{1})_{32} &= i\sqrt{\frac{6\pi}{5}} (Y_2^1 + Y_2^{-1}) \end{aligned} \quad (11)$$

Alors, à l'aide des formules (7) à (10) :

$$\gamma_{\varepsilon}(\vec{q}) = -4\pi f(q) \varepsilon_0 \sum_m \beta_m^{ij} Y_2^m(\Omega_{\vec{q}}) \quad (12)$$

Le terme d'interférence $h_{\varepsilon}^{(12)}(\hat{R}, \omega)$ est proportionnel à la fonction de corrélation à trois points (III.49) et contribue au spectre de Brillouin et de Raman. A l'aide de (III.48), (3) et (4), on a :

$$h_{\varepsilon}^{(12)}(\hat{R}, \omega)_{\text{Raman}} = \left(\frac{\alpha_0}{4\pi}\right)^3 \omega^4 \frac{\varepsilon_0}{2\pi} \operatorname{Re} \left\{ \left(\hat{\varepsilon}_{01} \cdot \hat{\varepsilon} \right)^* \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{q}} \frac{\gamma_{\varepsilon}(\vec{q})}{\varepsilon_0} Z(\vec{q}-\vec{k}) Z(\vec{k}-\vec{q}) \right. \\ \left. \sum_{\vec{q}'} \tau_{\Delta\vec{k}, \vec{q}'}^* \langle 0 | \alpha_{\vec{q}}(t) \alpha_{\Delta\vec{k}-\vec{q}'}(t) \alpha_{\vec{q}-\vec{k}}^+ \alpha_{\vec{k}-\vec{q}'}^+ | 0 \rangle \right\} \quad (13)$$

Le terme du deuxième ordre s'obtient à l'aide de (III.46) et (III.47) :

$$h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{R}, \omega) = \left(\frac{\alpha_0 \omega}{4\pi}\right)^4 \frac{1}{2\pi |\varepsilon|^2} \frac{1}{\Omega^2} \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} \gamma_{\varepsilon}^*(\vec{q}) \gamma_{\varepsilon}(\vec{q}') \langle S_{\vec{q}}(t) S_{\vec{q}-\vec{k}} S_{\vec{k}-\vec{q}'} S_{\vec{q}'} \rangle_{\Delta\omega} \quad (14)$$

où nous avons négligé le transfert d'impulsion par rapport aux vecteurs d'onde des phonons. Une expression similaire a été obtenue par Nakajima (N1) qui a traité explicitement l'excitation électronique virtuelle des atomes durant le processus de diffusion. Notons que l'expression (14) est encore générale, donc valable pour tout liquide diélectrique. Pour l'appliquer à l'hélium superfluide à $T = 0$, nous y insérons la série (3) en premier ordre. A l'aide de (4) il vient :

$$h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{R}, \omega) = \left(\frac{\alpha_0 \omega}{4\pi}\right)^4 \frac{\varepsilon_0^2}{2\pi} \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} \frac{\gamma_{\varepsilon}^*(\vec{q}) \gamma_{\varepsilon}(\vec{q}')}{|\varepsilon_0|^2} Z(\vec{q}) Z(\vec{q}') \langle 0 | \alpha_{\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}-\vec{k}}^+ \alpha_{\vec{k}-\vec{q}'}^+ | 0 \rangle_{\Delta\omega} \quad (15)$$

Avant d'évaluer la distribution spectrale de la lumière diffusée, nous estimons le rapport entre les intensités totales des contributions (6), (13) et (15). Dans les trois cas, la partie majeure est due à l'excitation de deux rotons où le transfert d'énergie est de l'ordre de 20°K . Comme la fréquence de la lumière est de l'ordre de 10^4°K , nous pouvons poser :

$$\omega \approx \omega_0$$

L'intensité totale de (6) s'obtient alors à l'aide de la règle de somme (II.27). Comme Δk est de l'ordre $10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$, nous pouvons utiliser la forme asymptotique de $S_{II}(\Delta k)$ que nous avons estimée à l'aide de (5) dans l'appendice D.2 (formules (D.14) et (D.15)), d'où

$$\begin{aligned} h_{\varepsilon}^{(1)}(\hat{R})_{\text{Raman}} &\equiv \int d\omega h_{\varepsilon}^{(1)}(\hat{R}, \omega)_{\text{Raman}} \\ &\approx \frac{28}{45} \left(\frac{\alpha_c}{4\pi} \right)^2 \left| \hat{\varepsilon}_{0L} \cdot \hat{\varepsilon} \right|^2 \omega_0^+ A^2 \varepsilon_0^- \Delta k^2 \int dq \left(\frac{Z(q)}{q} \right)^2 \end{aligned} \quad (16)$$

Pour les deux expressions (13) et (15), nous utilisons la règle de somme suivante :

$$\begin{aligned} \int d\omega \langle 0 | \alpha_{\vec{q}_1}(t) \alpha_{\vec{q}_2}(t) \alpha_{\vec{q}_3}^+ \alpha_{\vec{q}_4}^+ | 0 \rangle_{\Delta\omega} &= 2\pi \langle 0 | \alpha_{\vec{q}_1} \alpha_{\vec{q}_2} \alpha_{\vec{q}_3}^+ \alpha_{\vec{q}_4}^+ | 0 \rangle \\ &= 2\pi \left(\varepsilon_{\vec{q}_2, \vec{q}_1} + \varepsilon_{\vec{q}_4, \vec{q}_3} \right) \end{aligned} \quad (17)$$

d'où à l'aide de (13), à la limite thermodynamique :

$$\begin{aligned} h_{\varepsilon}^{(12)}(\hat{R})_{\text{Raman}} &\equiv \int d\omega h_{\varepsilon}^{(12)}(\hat{R}, \omega)_{\text{Raman}} \\ &= \left(\frac{\alpha_c}{4\pi} \right)^3 \omega_0^+ \varepsilon_0^- \text{Re} \left\{ \left(\hat{\varepsilon}_{0L} \cdot \hat{\varepsilon} \right)^* \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3q \frac{\delta \varepsilon(\vec{q})}{\varepsilon_0} Z(\vec{k}-\vec{q}) Z(\vec{q}-\vec{k}_0) \left[\tau_{\Delta\vec{k}, \vec{k}_0-\vec{q}}^* + \tau_{\Delta\vec{k}, \vec{q}-\vec{k}}^* \right] \right\} \end{aligned} \quad (18)$$

Nous utilisons de nouveau (5) pour estimer cette contribution. Au plus bas ordre de Δk on a :

$$\begin{aligned} Z(\vec{k}-\vec{q}) Z(\vec{q}-\vec{k}_0) \left[\tau_{\Delta\vec{k}, \vec{k}_0-\vec{q}}^* + \tau_{\Delta\vec{k}, \vec{q}-\vec{k}}^* \right] &= -8\pi A \varepsilon_0 \left(\frac{Z(q)}{q} \right)^2 \left[\Delta k^2 - 2 \left(\frac{\Delta\vec{k} \cdot \vec{q}}{q} \right)^2 \right] \\ &= -\frac{3\pi}{3} A \varepsilon_0 \left(\frac{Z(q)}{q} \right)^2 \Delta k^2 \left\{ 1 - 4 f_2 \left(\cos \angle_{\Delta\vec{k}, \vec{q}} \right) \right\} \end{aligned} \quad (19)$$

D'autre part, à l'aide de (12) et du théorème d'addition des harmoniques sphériques, on obtient :

$$\begin{aligned} \int d\Omega_{\vec{q}} \frac{\gamma_{\varepsilon}(\vec{q})}{\varepsilon_0} P_2(\omega \vec{v}_{\Delta\vec{k}, \vec{q}}) &= -\frac{(4\pi)^2}{5} f(q) \sum_m \beta_m^{ij} Y_2^m(\Omega_{\Delta\vec{k}}) \\ &= -\frac{(4\pi)^2}{5} f(q) (3 \Delta\hat{k} \Delta\hat{k} - 1)_{ij} \end{aligned} \quad (20)$$

où nous avons utilisé la relation (11). Sous les conditions géométriques de la figure 1, on a :

$$(3 \Delta\hat{k} \Delta\hat{k} - 1)_{ij} = -\hat{\varepsilon} \cdot \hat{\varepsilon}_{0\perp} - \frac{3}{2} \hat{\varepsilon} \cdot \hat{k}_0 \hat{\varepsilon}_0 \cdot \hat{k} \quad (21)$$

En insérant les relations (19) à (21) dans (18), il vient :

$$h_{\varepsilon}^{(12)}(\hat{R})_{\text{Raman}} = \frac{64}{45} \left(\frac{\alpha_0}{4\pi} \right)^3 \omega_0^4 \left| \hat{\varepsilon}_{0\perp} \cdot \hat{\varepsilon} \right|^2 A \vartheta_0^2 \Delta k^2 \int dq Z^2(q) f^2(q) \quad (22)$$

Ce résultat est en contradiction avec un travail récent de Fetter (F3) qui affirme que le terme d'interférence est zéro par des raisons de symétrie.

L'intensité totale du terme du deuxième ordre (15) s'obtient aussi à l'aide de (17) :

$$\begin{aligned} h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{R}) &\equiv \int h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{R}, \omega) d\omega \\ &= \left(\frac{\alpha_0}{4\pi} \right)^4 \omega_0^4 \vartheta_0^2 \frac{2}{(2\pi)^3} \int d^3q \left| \frac{\gamma_{\varepsilon}(\vec{q})}{\varepsilon} \right|^2 [Z(q)]^2 \end{aligned}$$

A l'aide de (12), l'intégration sur les angles se fait facilement. D'autre part, en tenant compte des relations (10) et (11), on vérifie aisément que

$$\sum_m |\beta_m^{ij}|^2 = \frac{12\pi}{5} \left(1 + \frac{1}{3} |\hat{\varepsilon}_0 \cdot \hat{\varepsilon}|^2 \right) \quad (23)$$

Alors nous trouvons :

$$h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{R}) = \frac{48}{5} \left(\frac{\alpha_0}{4\pi} \right)^4 \omega_0^4 \vartheta_0^2 \left(1 + \frac{1}{3} |\hat{\varepsilon}_0 \cdot \hat{\varepsilon}|^2 \right) \int dq q^2 f^2(q) Z^2(q) \quad (24)$$

Comparons maintenant les trois contributions (16), (22) et (24). D'abord on constate que le premier ordre et le terme d'interférence sont zéro, si la lumière incidente est polarisée dans la direction 3 (fig. 2). Considérons donc le cas où la lumière incidente est polarisée dans la direction 1. Dans toutes les trois expressions, la contribution majeure provient de la région du roton à cause du facteur $Z^2(q)$. On peut donc faire l'approximation suivante :

$$\int dq q^m f^n(q) Z^2(q) \approx q_0^m f^n(q_0) \int dq Z^2(q)$$

où

$$q_0 \approx 2 \text{ \AA}^{-1}$$

est le vecteur d'onde du roton. Alors le rapport des intensités totales est approximativement donné par :

$$\frac{h^{(12)}}{h^{(2)}} \approx \frac{h^{(1)}}{h^{(12)}} \approx \frac{A}{\frac{\alpha_0}{4\pi}} \frac{\Delta k^2}{f(q_0) q_0^2} \quad (25)$$

Le facteur de forme $f(q)$, défini par (III.44), est tracé dans la figure 3 pour deux valeurs différentes du paramètre λ qui - rappelons-le - doit être de l'ordre de grandeur $\frac{1}{d}$ où d est le rayon du coeur dur. Les valeurs numériques des constantes sont :

$$A \approx -4 \text{ \AA}^3 \quad (F5)$$

$$\frac{\alpha_0}{4\pi} \approx 0.2 \text{ \AA}^3 \quad (E1)$$

$$f(q_0) \approx 0.1$$

D'autre part, dans la géométrie de la figure 2, le transfert d'impulsion est

$$\Delta k \approx \sqrt{2} k_0 \quad (26)$$

donc, si la lumière incidente a une longueur d'onde de $5000 \text{ \AA}$, on a :

$$\Delta k \approx 2 \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$$

En insérant toutes ces valeurs dans (25), il vient :

$$\frac{h^{(12)}}{h^{(2)}} \approx \frac{h^{(1)}}{h^{(12)}} \approx -2 \times 10^{-4}$$

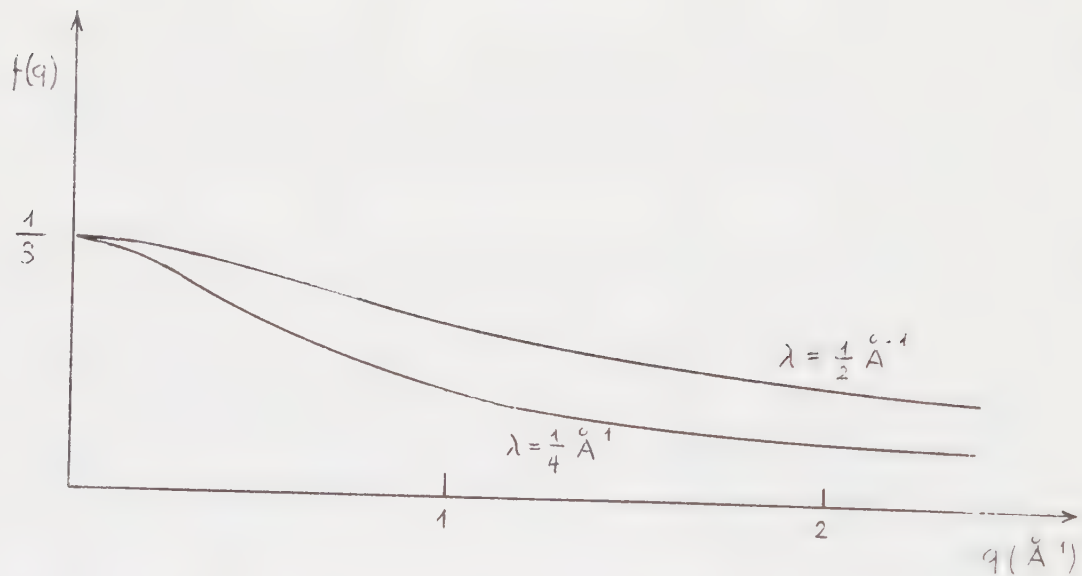


Fig. 3 : Le facteur de forme

Ce rapport pourrait être plus grand d'un facteur à peu près deux parce que, comme nous l'avons constaté dans la section (II.3), par l'approximation de Feynman-Cohen, on a la tendance de sous-estimer la contribution multiphononique. Mais même si l'on tient compte de ce fait, la contribution la plus importante est de loin le terme du deuxième ordre $h^{(2)}$. Pour voir les effets d'interférence, il faudrait utiliser une source de fréquence ω_0 plus grande, puisque, à cause de (25) et (26), le rapport des intensités est proportionnel à ω_0^2 . Les difficultés expérimentales provenant du manque de sources intenses à haute fréquence et de la limitation du pouvoir de résolution pourraient être en partie compensées par l'augmentation forte du coefficient de diffusion ($\propto \omega_0^4$). Ces expériences pourraient donner des informations intéressantes, par exemple sur le facteur de forme $f(q)$, et serviraient comme test des différentes théories.

2. Calcul du spectre de Raman pour des phonons libres

Nous avons vu dans la section précédente que la contribution dominante à la diffusion de Raman est le terme du deuxième ordre (15). La fonction de corrélation

$$\langle 0 | \alpha_{-\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}}(t) \alpha_{-\vec{q}}^+ \alpha_{\vec{q}}^+ | 0 \rangle_{\Delta\omega}$$

peut être reliée à la fonction de Green retardée

$$G_{\vec{q}\vec{q}'}(t) \equiv -i \langle 0 | [\alpha_{-\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}}(t), \alpha_{-\vec{q}}^+ \alpha_{\vec{q}}^+] | 0 \rangle \Theta(t) \quad (27)$$

à l'aide du théorème de fluctuation-dissipation :

$$\langle 0 | \alpha_{-\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}}(t) \alpha_{-\vec{q}}^+ \alpha_{\vec{q}}^+ | 0 \rangle_{\Delta\omega} = 2 \chi_{\vec{q}\vec{q}'}''(\Delta\omega) \Theta(\Delta\omega)$$

$$\text{où} \quad \chi_{\vec{q}\vec{q}'}''(t) \equiv \frac{1}{2} \langle 0 | [\alpha_{-\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}}(t), \alpha_{-\vec{q}}^+ \alpha_{\vec{q}}^+] | 0 \rangle \quad (28)$$

est la fonction de dissipation et de la relation de dispersion :

$$G_{\vec{q}\vec{q}'}(\Delta\omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\chi''_{\vec{q}\vec{q}'}(\omega')}{\Delta\omega - \omega'} - i \chi''_{\vec{q}\vec{q}'}(\Delta\omega) \quad (29)$$

On en déduit la relation suivante :

$$\langle 0 | \alpha_{-\vec{q}}(t) \alpha_{\vec{q}}(t) \alpha_{-\vec{q}'}^{\dagger} \alpha_{\vec{q}'}^{\dagger} | 0 \rangle = -2 \Theta(\Delta\omega) \text{Im} G_{\vec{q}\vec{q}'}(\Delta\omega) \quad (30)$$

En développant la fonction de Green en polynomes de Legendre et en utilisant le théorème d'addition des harmoniques sphériques, il vient :

$$G_{\vec{q}\vec{q}'}(\Delta\omega) = \sum_l G_{qq'}^{(l)}(\Delta\omega) \frac{4\pi}{2l+1} \sum_m Y_l^m(\Omega_{\vec{q}}) Y_l^{m*}(\Omega_{\vec{q}'}) \quad (31)$$

En insérant (30) et (31) dans (15), on obtient à l'aide de (12) et de (23), à la limite thermodynamique :

$$n_{\varepsilon}^{(2)}(\vec{q}, \omega) = -\frac{12}{25\pi^3} \left(\frac{\alpha_0 \omega}{4\pi} \right)^4 \left(1 + \frac{4}{3} \left| \frac{\vec{q}}{q} \cdot \frac{\vec{q}'}{q'} \right| \right) G_{qq'}^{(2)}(\Delta\omega) \quad (32)$$

$$\Omega \int d\vec{q} q^2 f(q) Z(q) \int d\vec{q}' q'^2 f(q') Z(q') \text{Im} G_{\vec{q}\vec{q}'}^{(2)}(\Delta\omega) \quad (32)$$

Notons que cette expression est plus générale que celle obtenue par Stephen (S6) qui a supposé que la fonction de corrélation à quatre points puisse être factorisée. Elle factorise s'il n'y a pas d'interaction entre les phonons. Dans ce cas, il vient :

$$\text{Im} G_{\vec{q}\vec{q}'}(\Delta\omega) = -\pi \left[\delta_{\vec{q}\vec{q}'} + \delta_{\vec{q}, -\vec{q}'} \right] \delta(\Delta\omega - 2\varepsilon_q) \quad (33)$$

D'autre part, on a à la limite thermodynamique :

$$\frac{\Omega}{(2\pi)^3} \delta_{\vec{q}, \pm\vec{q}'} \longrightarrow \delta(\vec{q} \mp \vec{q}') = \sum_l (\pm)^l \frac{2l+1}{4\pi} \frac{1}{q^2} \delta(q-q') P_l(\omega \vec{q} \cdot \vec{q}') \quad (34)$$

Cette dernière relation est prouvée en vérifiant que

$$\int d^3q' f(q') \delta(\vec{q} \pm \vec{q}') = f(\pm\vec{q})$$

pour une fonction test quelconque. Alors on trouve

$$\Omega \operatorname{Im} G_{qq'}^{(2)}(\Delta\omega) \longrightarrow - (2\pi)^3 \frac{5}{2} \frac{1}{q^2} \delta(q-q') \delta(\Delta\omega - 2\varepsilon_q)$$

d'où à l'aide de (32) :

$$h_{\varepsilon}^{(2)}(\hat{k}, \omega) = \frac{48}{5} \left(\frac{\alpha_0 \omega}{4\pi} \right)^4 \left(1 + \frac{1}{3} |\hat{\varepsilon}_0 \cdot \hat{\varepsilon}|^2 \right) \varepsilon_c^2 \theta(\Delta\omega) \int dq q^2 f^2(q) Z^2(q) \delta(\Delta\omega - 2\varepsilon_q) \quad (35)$$

En intégrant sur $\Delta\omega$ on obtient, comme il se doit, la relation (24). L'équation (35) est équivalente à celle obtenue par Stephen (S6) sauf que son cut-off est remplacé par le facteur de forme $f(q)$.

3. Comparaison à l'expérience

Considérons d'abord la dépendance de l'intensité des directions de polarisation $\hat{\varepsilon}_0$ et $\hat{\varepsilon}$. Le facteur

$$1 + \frac{1}{3} |\hat{\varepsilon}_0 \cdot \hat{\varepsilon}|^2$$

qui apparaît déjà dans l'expression générale (32), donne lieu à une forte dépolarisation, en accord avec les expériences de Greytak et Yan (G4). Par exemple, si l'on choisit la polarisation $\hat{\varepsilon}_0$ dans la direction d'observation (sans fixer $\hat{\varepsilon}$) l'intensité diffusée devrait être plus petite d'un facteur

$$\frac{6}{7} \approx 0.86$$

que dans le cas où la lumière incidente est polarisée perpendiculairement à la direction d'observation. Les mesures donnent :

$$\frac{I_{\parallel}}{I_{\perp}} = 0.14 \pm 0.03$$

Pour comparer numériquement la formule (35) à l'expérience, il faut tenir compte du temps de vie fini des excitations et de la fonction de résolution du spectromètre. Cette dernière est bien représentée par une forme Gaussienne (G5). Supposons que l'effet du temps de vie soit négligeable par rapport à la largeur de raie due au spectromètre. A 1.2 °K où les mesures (G4, G3) ont été faites, le temps de vie donne une largeur de ~ 0.1 °K, tandis qu'une largeur typique du spectromètre est de l'ordre de quelques degrés. Donc nous remplaçons la fonction $\delta(\Delta\omega - 2\varepsilon_q)$ par une Gaussienne :

$$\delta(\Delta\omega - 2\varepsilon_q) \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2\pi} \gamma} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta\omega - 2\varepsilon_q}{\gamma} \right)^2 \right\}$$

En utilisant la courbe expérimentale pour $Z(q)$ et ε_q (C7) et le facteur de forme $f(q)$ de la figure 3 (avec $\lambda = \frac{1}{4} \text{ \AA}^{-1}$), le calcul à l'ordinateur donne le spectre tracé dans la figure 4. Comme l'intensité totale ne dépend pas des interactions résiduelles (règle de somme), nous avons choisi l'échelle du spectre mesuré de sorte qu'il soutende la même surface que la courbe théorique.

Greytak (G4) détermine la valeur absolue de la diffusion de Raman à l'aide de l'intensité de la raie de Brillouin, laquelle - comme l'ont démontré d'autres expériences (par exemple G7) - est correctement décrite par la formule (III.32). Pour les données expérimentales de Greytak, on obtient (par unité d'angle solide) :

$$h_{\text{Brillouin}} = \omega_0^4 \left(\frac{\alpha_0}{4\pi} \right)^4 \frac{\rho_0 k_B T}{m s^2} \approx 8.5 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1}$$

D'autre part, les mesures donnent :

$$\frac{h^{(2)}}{h_{\text{Brillouin}}} = 1.6 \times 10^{-3}$$

En combinant ces deux équations, on a un coefficient de diffusion

$$h^{(2)} \approx 1.35 \times 10^{-11} \text{ cm}^{-1} \quad (36)$$

Greytak indique une valeur $6 \times 10^{-12} \text{ cm}^{-1}$ ce qui nous semble erroné. Ceci provient probablement du fait qu'il se réfère aux expériences de Grimm et Dransfeld (G7) sans tenir compte des données expérimentales différentes. En effet, ces derniers utilisent un laser du type He-Ne qui émet une longueur d'onde λ_0 de $6328 \text{ \AA}$, tandis que Greytak a

$$\lambda_0 = 5145 \text{ \AA}$$

Si l'on corrige l'extrapolation de Greytak par le coefficient approprié

$$\left(\frac{6328}{5145} \right)^4 = 2.25$$

on obtient aussi (36). Le coefficient de diffusion de la fig. 4 (intégré sur $\Delta\omega$) est plus grand d'un facteur à peu près trois. Ce désaccord n'est pas surprenant puisque l'intensité du spectre théorique (35) dépend fortement du choix du facteur de forme $f(q)$.

Par contre, la forme du spectre n'est pas sensible au choix de $f(q)$. On s'aperçoit que la courbe théorique est en bon accord général avec l'expérience. En particulier, le pic que l'on s'attend à voir dans la région de $2\Delta_1$ (voir fig. 1) est supprimé par le facteur $Z^2(q)$ (fig. II.2). Cependant, il reste des déviations dans la région des rotons et des maxons. Elles pourraient provenir des interactions résiduelles que nous avons négligées jusqu'à présent.

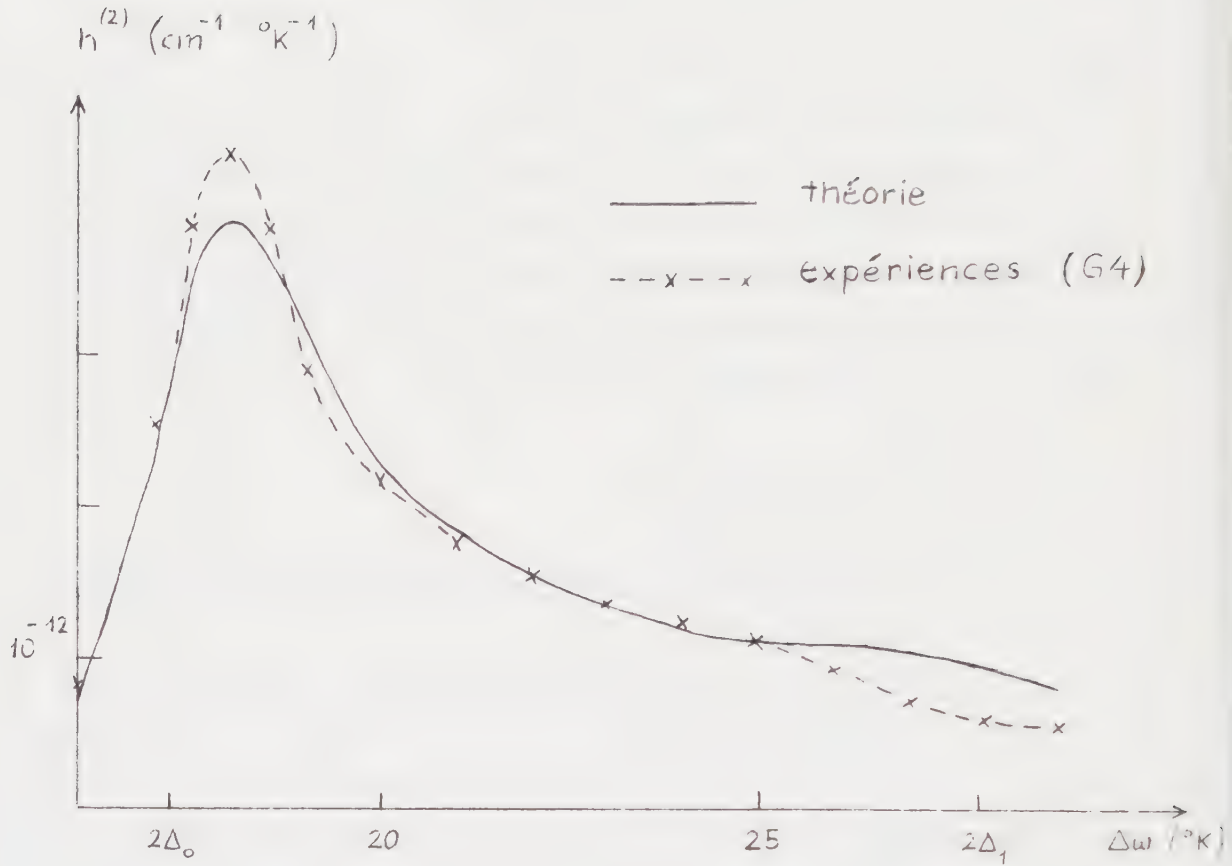


Fig. 4 : Le spectre de Raman pour une résolution de 2.1°K , à une température 1.16°K .

4. Effets des interactions résiduelles

Supposons que l'hamiltonian ait la forme suivante :

$$\mathcal{H} = \sum_{\vec{k}} \varepsilon_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}}^+ \alpha_{\vec{k}} + \frac{1}{2\Omega} \sum_{\vec{q}, \vec{k}, \vec{k}'} \bar{V}(\vec{k}, \vec{k}') \alpha_{\frac{\vec{q}}{2}, \vec{k}}^+ \alpha_{\frac{\vec{q}}{2}, -\vec{k}}^+ \alpha_{\frac{\vec{q}}{2}, \vec{k}'} \alpha_{\frac{\vec{q}}{2}, -\vec{k}'} \quad (37)$$

où ε_k est le spectre renormalisé, $\Gamma_{\vec{q}}(\vec{k}, \vec{k}')$ est le vertex effectif et les opérateurs $\alpha_{\vec{k}}^+$, $\alpha_{\vec{k}}$ sont des opérateurs de création et d'annihilation bosoniques. En définissant l'opérateur

$$c_{\vec{q}}^+ \equiv \alpha_{\vec{q}}^+ \alpha_{-\vec{q}}^+ \quad (38)$$

qui crée une paire d'excitations avec des impulsions opposées, la fonction de Green (27) s'écrit sous la forme suivante :

$$G_{\vec{q}\vec{q}'}(t) \equiv -i \langle 0 | [c_{\vec{q}}(t), c_{\vec{q}'}^+] | 0 \rangle \Theta(t) \quad (39)$$

Pour obtenir l'équation de mouvement de cette fonction, on a besoin du commutateur suivant :

$$[\mathcal{H}, c_{\vec{q}}]_- = -2\varepsilon_{\vec{q}} c_{\vec{q}} - \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{k}} \Gamma_0(\vec{q}, \vec{k}) c_{\vec{k}} + \dots \quad (40)$$

où nous avons utilisé la symétrie du vertex

$$\Gamma_{\vec{q}}(\vec{k}, \vec{k}') = \Gamma_{\vec{q}}(-\vec{k}, \vec{k}') \quad (41)$$

et nous avons omis les termes qui donnent zéro lorsqu'ils s'appliquent (à gauche ou à droite) sur le vide $|0\rangle$. Alors nous obtenons l'équation suivante pour la fonction de Green :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} G_{\vec{q}\vec{q}'}(t) &= -i \langle [c_{\vec{q}}(t), c_{\vec{q}'}^+] \rangle \delta(t) + \langle [[\mathcal{H}, c_{\vec{q}}(t)]_-, c_{\vec{q}'}^+] \rangle \Theta(t) \\ &= -i [\delta_{\vec{q}\vec{q}'} + \delta_{\vec{q}, -\vec{q}'}] \delta(t) - 2\varepsilon_{\vec{q}} i G_{\vec{q}\vec{q}'}(t) - \frac{i}{\Omega} \sum_{\vec{k}} \Gamma_0(\vec{q}, \vec{k}) G_{\vec{k}\vec{q}'}(t) \end{aligned}$$

d'où en transformée de Fourier :

$$(\omega - 2\varepsilon_{\vec{q}}) G_{\vec{q}\vec{q}'}(\omega) - \frac{1}{\Omega} \sum_{\vec{k}} \Gamma_0(\vec{q}, \vec{k}) G_{\vec{k}\vec{q}'}(\omega) = \delta_{\vec{q}\vec{q}'} + \delta_{\vec{q}, -\vec{q}'} \quad (42)$$

Dans la limite thermodynamique on a :

$$\begin{aligned}
 \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \delta_{\vec{q}, \pm \vec{q}'} &\longrightarrow \delta(\vec{q} \mp \vec{q}') \\
 \frac{\Omega}{(2\pi)^3} G_{\vec{q}\vec{q}'}(\omega) &\longrightarrow \tilde{G}_{\vec{q}\vec{q}'}(\omega) \\
 \frac{(2\pi)^3}{\Omega} \sum_{\vec{k}} &\longrightarrow \int d^3k
 \end{aligned}
 \tag{43}$$

Donc l'équation (42) prend la forme suivante :

$$(\omega - 2\varepsilon_q) \tilde{G}_{\vec{q}\vec{q}'}(\omega) - \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3k \Gamma_0(\vec{q}, \vec{k}) \tilde{G}_{\vec{k}\vec{q}'}(\omega) = \delta(\vec{q} + \vec{q}') + \delta(\vec{q} \cdot \vec{q}')
 \tag{44}$$

A l'aide de (34), du développement en polynomes de Legendre :

$$\begin{aligned}
 \tilde{G}_{\vec{q}\vec{q}'}(\omega) &= \sum_l \tilde{G}_{qq'}^{(l)}(\omega) P_l(\cos \vartheta_{\vec{q}, \vec{q}'}) \\
 \Gamma_0(\vec{q}, \vec{k}) &= \sum_{l'} \Gamma_{qk}^{(l')} P_{l'}(\cos \vartheta_{\vec{q}, \vec{k}})
 \end{aligned}
 \tag{45}$$

et du théorème d'addition :

$$\int d\Omega_k P_{l'}(\cos \vartheta_{\vec{q}, \vec{k}}) P_l(\cos \vartheta_{\vec{k}, \vec{q}'}) = \frac{4\pi}{2l+1} \delta_{l,l'} P_l(\cos \vartheta_{\vec{q}, \vec{q}'})$$

nous obtenons l'équation suivante pour le multipole l :

$$\begin{aligned}
 (\omega - 2\varepsilon_q) \tilde{G}_{qq'}^{(l)}(\omega) - \frac{1}{2\pi^2(2l+1)} \int dk k^2 \Gamma_{qk}^{(l)} \tilde{G}_{kq'}^{(l)}(\omega) \\
 = \left[1 + (-)^l \right] \frac{2l+1}{4\pi} \frac{1}{q^2} \varepsilon(q - q')
 \end{aligned}
 \tag{46}$$

A l'aide des définitions

$$\begin{aligned}
 \gamma_{qk}^{(l)} &\equiv \frac{1}{2\pi^2(2l+1)} \Gamma_{qk}^{(l)} \\
 g_{kq'}^{(l)}(\omega) &\equiv \frac{2\pi}{2l+1} k q' \tilde{G}_{kq'}^{(l)}(\omega)
 \end{aligned}
 \tag{47}$$

il vient pour les l pairs :

$$g_{qq'}^{(l)}(\omega) = \frac{\delta(q-q')}{\omega - 2\varepsilon_q} + \frac{q}{\omega - 2\varepsilon_q} \int dk k \gamma_{qk}^{(l)} g_{kq'}^{(l)}(\omega) \quad (48)$$

En multipliant cette équation avec q' et en intégrant, on obtient :

$$g_q^{(l)}(\omega) = \frac{q}{\omega - 2\varepsilon_q} + \frac{q}{\omega - 2\varepsilon_q} \int dk k \gamma_{qk}^{(l)} g_k^{(l)}(\omega) \quad (49)$$

où nous avons introduit la fonction suivante :

$$g_q^{(l)}(\omega) \equiv \int dq' q' g_{qq'}^{(l)}(\omega) \quad (50)$$

Nous aimerions évaluer l'influence des interactions résiduelles sur le spectre de Raman (32). Pour ce faire, nous faisons les approximations suivantes : D'abord, nous négligeons la dépendance en q du couplage entre la lumière et les excitations élémentaires et posons

$$f(q) Z(q) = \text{const} \quad (51)$$

d'où à l'aide de (32), (43), (47) et (50) :

$$h^{(2)} \propto - \text{Im} \int dq q g_q^{(2)}(\Delta\omega) \quad (52)$$

C'est une approximation assez grossière puisque $Z(q)$ varie rapidement dans la région des rotons, mais elle nous permettra d'évaluer qualitativement l'effet des interactions. Dans le même esprit, nous supposons que les vertices $\gamma_{qk}^{(2)}$ sont constants pour certains domaines de q, k . Soit $\mathcal{P}$ le domaine des phonons de longue longueur d'onde et $\mathcal{R}$ celui des rotons (voir fig. 5) et définissons les fonctions de cut-off suivantes :

$$\begin{aligned}\Theta_1(p) &\equiv \Theta(k_1 - p) = \begin{cases} 1 & \text{si } p \in \mathcal{P} \\ 0 & \text{si } p \in \mathcal{R} \end{cases} \\ \Theta_2(p) &\equiv \Theta(p - k_1) = \begin{cases} 0 & \text{si } p \in \mathcal{P} \\ 1 & \text{si } p \in \mathcal{R} \end{cases}\end{aligned}\quad (53)$$

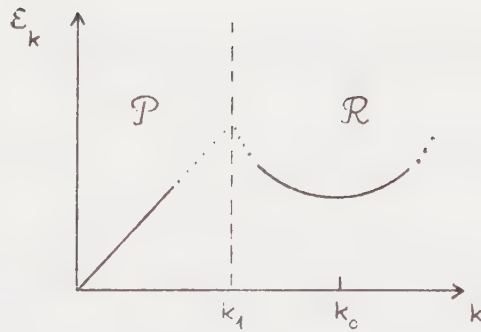


Fig. 5 : Définition des domaines $\mathcal{P}$, $\mathcal{R}$

Alors nous posons :

$$\chi_{qk}^{(2)} = \sum_{i,j=1}^2 \Theta_i(q) \Theta_j(k) v_{ij} \quad (54)$$

où v_{ij} sont des constantes. En particulier, v_{11} représente l'interaction phonon-phonon, v_{22} l'interaction roton-roton, tandis que $v_{12} = v_{21}$ correspond à l'interaction phonon-roton. Le spectre est approximé par

$$\varepsilon_k = \begin{cases} sk & , k \in \mathcal{P} \\ \Delta_0 + \frac{(k-k_0)^2}{2\mu} & , k \in \mathcal{R} \end{cases} \quad (55)$$

où Δ_0 , k_0 , μ sont les paramètres du roton introduits par Landau et s est la vitesse du son. Le choix particulier de l'interaction (54) nous permet de résoudre l'équation intégrale (49), et l'approximation (51) sert à relier cette solution au coefficient de diffusion. En effet, à l'aide de (52) on a :

$$h^{(2)} \propto - \text{Im} \sum_j R_j(\Delta\omega) \quad (56)$$

où

$$R_j(\Delta\omega) \equiv \int dq q \Theta_j(q) g_q^{(2)}(\Delta\omega) \quad (57)$$

D'autre part, en multipliant (49) par $q\Theta_m(q)$ et en intégrant, on obtient à l'aide de (54) et de la relation

$$\Theta_m(q) \Theta_i(q) = \delta_{im} \Theta_m(q)$$

l'équation linéaire suivante :

$$R_m(\Delta\omega) = R_m^0(\Delta\omega) \left[1 + \sum_j v_{mj} R_j(\Delta\omega) \right] \quad (58)$$

où

$$R_m^0(\Delta\omega) \equiv \int dq \frac{q^2}{\Delta\omega - 2\varepsilon_q + i\delta} \Theta_m(q)$$

En forme matricielle, nous avons l'équation suivante :

$$\begin{pmatrix} 1 - v_{11} R_1^0(\Delta\omega) & -v_{12} R_1^0(\Delta\omega) \\ -v_{21} R_2^0(\Delta\omega) & 1 - v_{22} R_2^0(\Delta\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} R_1(\Delta\omega) \\ R_2(\Delta\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_1^c(\Delta\omega) \\ R_2^c(\Delta\omega) \end{pmatrix}$$

dont la solution est donnée par :

$$R_i(\Delta\omega) = \frac{1}{\det} \left\{ R_i^0(\Delta\omega) (1 - R_j^0(\Delta\omega) v_{jj}) + R_j^0(\Delta\omega) R_i^c(\Delta\omega) v_{ij} \right\} \quad (59)$$

$i, j = 1, 2 ; i \neq j$

Alors nous obtenons à l'aide de (56) :

$$h^{(2)} \propto - \text{Im} \left\{ \frac{R_1^0 + R_2^0 + (2u_{12} - u_{11} - u_{22}) R_1^0 R_2^0}{1 - u_{11} R_1^0 - u_{22} R_2^0 + (u_{11} u_{22} - u_{12}^2) R_1^0 R_2^0} \right\} \quad (60)$$

La méthode présentée dans cette section a été proposée par Jäckle (J6), et l'équation (60) est aussi dérivée dans B2. Afin de discuter son comportement général, il faut calculer les fonctions $R_i^0(\omega)$. Elles sont en général complexes :

$$R_i^0(\omega) = r_i(\omega) - i\pi \xi_i(\omega) \quad (61)$$

$$\begin{aligned} \text{où } \xi_i(\omega) &\equiv \int dq \, q^2 \, \Theta_i(q) \, \delta(\omega - 2\varepsilon_q) \\ r_i(\omega) &\equiv \oint dq \, \frac{q^2 \, \Theta_i(q)}{\omega - 2\varepsilon_q} = \oint d\omega' \, \frac{\xi_i(\omega')}{\omega - \omega'} \end{aligned} \quad (62)$$

$\xi_i(\omega)$ correspond à la densité d'états à deux phonons (rotons). En particulier, à l'aide de (55) (voir aussi fig. 5) :

$$\begin{aligned} \xi_1(\omega) &= \frac{\omega^2}{(2s)^3} \, \Theta(2sk_1 - \omega) \\ r_1(\omega) &\approx - \frac{k_1^2}{4s} \\ \xi_2(\omega) &\approx \sqrt{\frac{\mu}{\omega - 2\Delta_0}} \, k_0^2 \, \Theta(\omega - 2\Delta_0) \\ r_2(\omega) &\approx \begin{cases} - 2k_0^2 \sqrt{\frac{\mu}{2\Delta_0 - \omega}} & \text{pour } \omega < 2\Delta_0 \\ 2k_0^2 \sqrt{\frac{\mu}{2\omega_c}} & \text{pour } \omega > 2\Delta_0 \end{cases} \end{aligned} \quad (63)$$

Dans la dernière relation, ω_c est un cut-off pour le spectre des rotons.

Discutons maintenant les propriétés principales de (60).

Si nous négligeons les phonons, nous avons :

$$h^{(2)}(\omega) \propto - \text{Im} \frac{R_2^0(\omega)}{1 - v_{22} R_2^0(\omega)} \quad (64)$$

Cette équation a été obtenue par Ruvalds et Zawadowski (R5), et une forme similaire apparaît chez Iwamoto (I2).

Pour $\omega < 2 \Delta_0$, $R_2^0(\omega)$ est réel et tend vers $-\infty$ si $\omega \rightarrow 2 \Delta_0$. Si v_{22} est négatif, il existe toujours un point

$$\omega = 2 \Delta_0 - \varepsilon_B$$

où le dénominateur de (64) est zéro, explicitement :

$$1 - v_{22} R_2^0(2 \Delta_0 - \varepsilon_B) = - 2 v_{22} k_0^2 \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_B}}$$

d'où

$$\varepsilon_B = \left(2 v_{22} k_0^2 \right)^2 \mu \quad (65)$$

Le coefficient de diffusion devient :

$$h^{(2)}(\omega) \propto \pi \frac{\varepsilon_B}{|v_{22}|} \delta(\omega - 2 \Delta_0 + \varepsilon_B)$$

Ce pôle correspond à un état lié de deux rotons. Pour $\omega > 2 \Delta_0$, l'interaction aurait l'effet de déformer légèrement la forme du spectre non perturbé (Z1).

Considérons un deuxième cas particulier.

Pour évaluer l'influence des phonons, nous supposons que

$$v_{11} = v_{12} = v_{22} \equiv v < 0 \quad (67)$$

Alors l'équation (60) devient :

$$h^{(2)} \propto \text{Im} \frac{R_1^c + R_2^c}{1 - v(R_1^c + R_2^c)}$$

Pour $\omega \gg 2 \Delta_0$, les phonons n'ont guère d'effet puisque leur densité d'états est beaucoup plus petite que celle des rotons. Discutons donc le cas $\omega \leq 2 \Delta_0$. On a à l'aide de (63) :

$$h^{(2)}(\omega) \propto \frac{\pi \varphi_1}{[1 - v r_2(\omega)]^2 + \pi^2 v^2 \varphi_1^2} \quad (68)$$

où nous avons négligé r_1 par rapport à r_2 . L'interaction phonon-roton introduit une largeur de raie γ de l'état lié défini par l'équation suivante :

$$1 - v r_2(2\Delta_0 - \varepsilon_B \pm \gamma) = \pm \pi v \varphi_1 \quad (69)$$

A l'aide de (63) et (65), cette équation s'écrit de la manière suivante :

$$1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_B}{\varepsilon_B \pm \gamma}} = \pm \eta \sqrt{\frac{\varepsilon_B}{2\Delta_0}} \quad (70)$$

$$\text{où } \eta = \pi \sqrt{\frac{2\Delta_0}{\mu}} \frac{(2\Delta_0)^2}{2k_0^2(2s)^3} \approx 0.1$$

Pour une énergie de liaison $\varepsilon_B \ll 2 \Delta_0$ il découle de (70) que $\gamma \ll \varepsilon_B$. Explicitement, en développant en puissances de $\frac{\gamma}{\varepsilon_B}$ on a :

$$\gamma = 0.2 \sqrt{\frac{\varepsilon_B}{2\Delta_0}} \varepsilon_B$$

Si $\varepsilon_B < 1$ °K il vient :

$$\gamma < 0.05 \varepsilon_B$$

Donc la largeur de raie de l'état lié est beaucoup plus petite que l'énergie de liaison si l'interaction phonon-roton est du même ordre de grandeur que l'interaction roton-roton et que les deux couplages sont négatifs.

Discutons encore le cas où seulement l'interaction phonon-roton est différente de zéro :

$$v_{11} = v_{22} = 0$$

$$v_{12} = v$$

Alors l'équation (60) prend la forme suivante :

$$h^{(2)} \propto \pi g_1 \frac{[v r_2 + 1]^2}{[1 - v^2 r_1 r_2]^2 + \pi^2 g_1^2 r_2^2 v^4} \quad (71)$$

A cause des signes négatifs de r_1 , r_2 il y a résonance à $\omega = \omega_r$ défini par :

$$1 = v^2 r_1(\omega_r) r_2(\omega_r) \quad (72)$$

indépendamment du signe de l'interaction. Comme v est supposé être petit par rapport aux énergies d'excitation, on a :

$$|v r_1(\omega)| \ll 1 \quad \text{pour tout } \omega$$

$$\text{d'où } |v r_2(\omega_r)| \gg 1$$

D'autre part, comme $|r_2(\omega)|$ est monotone pour $\omega < 2\Delta_0$ et tend vers infini pour $\omega \rightarrow 2\Delta_0$, cette dernière inégalité est satisfaite pour $\omega_r \leq \omega \leq 2\Delta_0$. Donc nous obtenons :

$$h^{(2)}(\omega_r) \propto \frac{1}{\pi \varphi_1 v^2} \quad (73)$$

et aussi :

$$\lim_{\omega \rightarrow 2\Delta_0} h^{(2)}(\omega) \propto \frac{1}{v^2 \left(\pi \varphi_1 + \frac{r_1^2}{\pi \varphi_1} \right)} \quad (74)$$

Comme $\pi \varphi_1$ est du même ordre de grandeur que r_1 , nous nous apercevons que la largeur de la résonance est de l'ordre de la différence d'énergie

$$2\Delta_0 - \omega_r$$

Les trois cas que nous avons traités sont représentés dans la figure 6 et comparés au cas sans interaction.

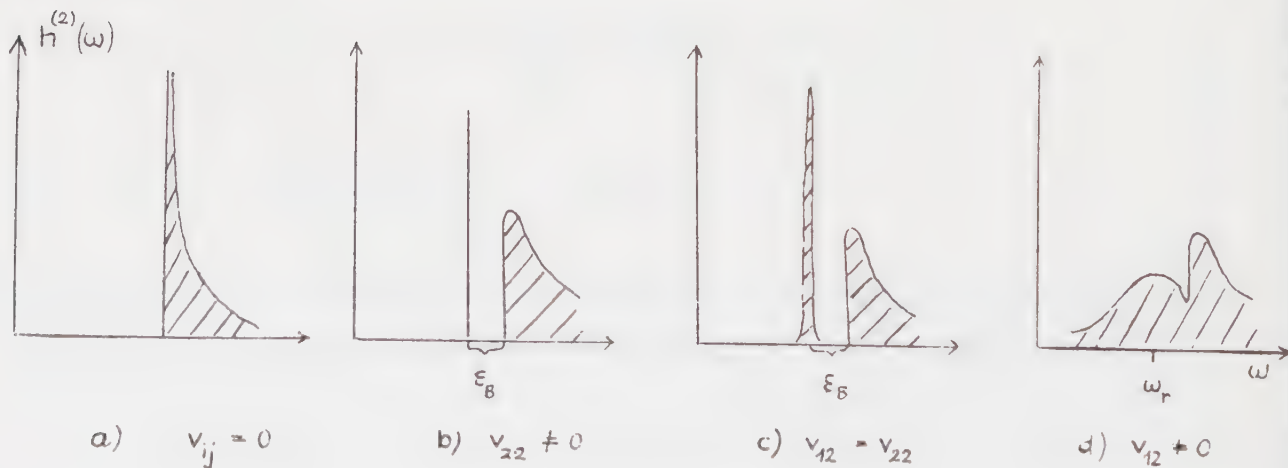


Fig. 6 : Spectre de Raman pour des types d'interaction différents.

5. Evidence d'un état lié roton-roton ?

La question de l'existence d'un état lié qui était prédit indépendamment par Ruvalds et Zawadowski (R5) et Iwamoto (I2) a donné lieu à beaucoup de travaux expérimentaux (pour une revue voir G2) et théoriques (P7, Z1, Y3, G6, C6, S4, N2). Deux propriétés des expériences de Greytak et ses collaborateurs (G3) semblent confirmer cette prédiction : premièrement la suppression du pic des maxons et deuxièmement le déplacement du pic à deux rotons vers une énergie plus basse que celle déduite des expériences de diffusion de neutrons (voir fig. 7). En effet, les calculs montrent (Z1) qu'une interaction attractive augmente l'intensité du pic des rotons tout en supprimant celui des maxons. D'autre part, cette même interaction donne lieu au pôle de l'état lié et déplace donc la raie vers des énergies plus basses.

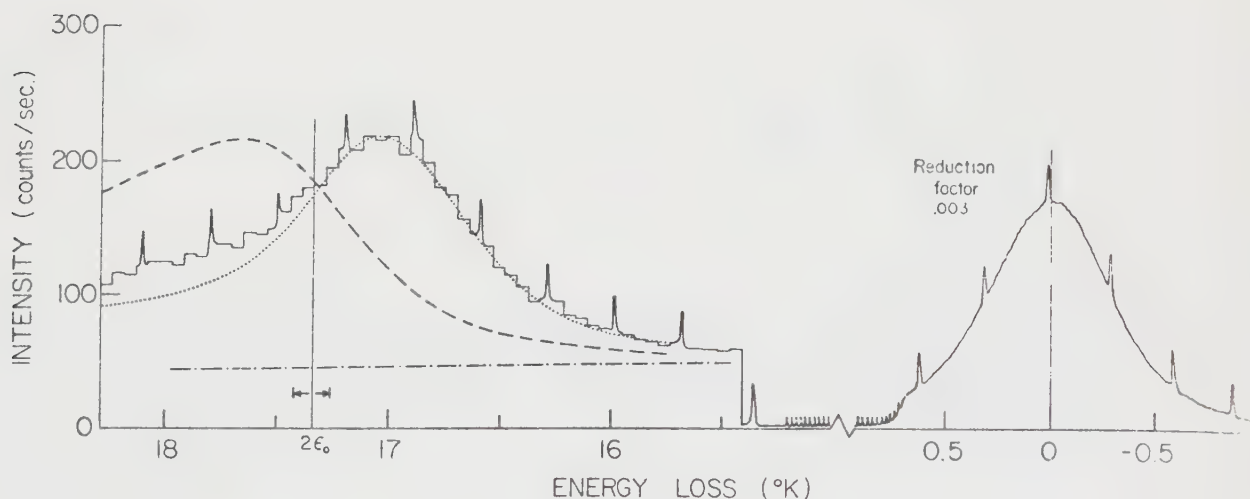


Fig. 7 : Le spectre de Raman à une température $T = 1.2^{\circ}\text{K}$ (selon G3). Le pic central est dû à la diffusion de Brillouin; il détermine la fonction de résolution.

- Théorie de Ruvalds et Zawadowski
- Spectre théorique sans interaction
- Diffusion du fonds

L'analyse de Ruvalds et Zawadowski se base sur deux hypothèses. La première est que le couplage entre la lumière et les excitations élémentaires est constant et que par la suite, le coefficient de diffusion est simplement donné par la densité d'états à deux phonons. La deuxième est que la valeur de l'énergie d'un roton est celle indiquée par Cowley et Woods, ce qui donne une énergie de liaison (G3)

$$\varepsilon_B = (0.37 \pm 0.1) ^\circ K \quad (75)$$

La première hypothèse ne se justifie guère parce que, comme l'avait déjà remarqué Stephen (S6), le couplage dépend du facteur $Z^2(q)$ qui tend à supprimer les maxons. Quant à la deuxième, nous avons vu dans la section (II.4) qu'en tenant compte des multiphonons et aussi des nouvelles expériences de Passell (P2), on obtient une valeur plus réaliste pour Δ_0 de :

$$\Delta_0 = 8.6 \pm 0.1 ^\circ K$$

Elle donnerait l'énergie de liaison suivante :

$$\varepsilon_B = (0.18 \pm 0.2) ^\circ K \quad (76)$$

Il y a une troisième remarque à faire. Avec le pouvoir de résolution utilisé par Greytak (la largeur totale de la raie centrale est $0.68 ^\circ K$), deux raies séparées devraient apparaître (comme dans la figure 6) si l'estimation (75) est correcte.

Cependant, il serait faux d'en conclure que l'état lié n'existe pas. En effet, le spectre que nous avons calculé pour des phonons libres, en tenant compte du facteur $Z(q)$, n'est pas en accord complet avec les expériences (fig. 4). Si nous ajustons notre expression théorique à l'expérience de la même manière que Greytak le fait avec la théorie de Ruvalds et Zawadowski (fig. 7), en identifiant les hauteurs des pics expérimentaux et théoriques,

notre courbe continuerait au-dessus du spectre expérimental à partir du maximum, tandis que la courbe de Ruvalds et Zawadowski est au-dessous du spectre mesuré. On est tenté d'affirmer que la vraie solution se trouve entre les deux théories, c'est-à-dire que la différence entre le spectre mesuré et la densité d'états à deux phonons (fig. 1) provient d'une part de la fonction de couplage entre la lumière et les excitations élémentaires (surtout du facteur $Z(q)$), et d'autre part des interactions résiduelles, soit phonon-roton, soit roton-roton. Ainsi, les interactions joueraient un rôle non-négligeable, mais moins important que c'était suggéré par Ruvalds et Zawadowski. Cette conclusion est consistante avec notre estimation de l'énergie de liaison (76), mais aussi avec une remarque de Greytak (G2) qui admet qu'on obtient un meilleur fit du spectre si l'on choisit une énergie de liaison plus petite.

Pour trancher la question si un état lié existe ou si l'on a plutôt affaire à une résonance du type de la figure 6.d, des mesures plus exactes sont nécessaires puisque, dans le cas d'un état lié, deux raies séparées devraient apparaître. D'autre part, des calculs numériques qui incluent le facteur $Z(q)$ et les interactions résiduelles pourraient être utiles. Il serait aussi souhaitable que l'on dérive microscopiquement les interactions résiduelles, par exemple à l'aide d'une transformation canonique appliquée à l'hamiltonien de Sunakawa (I.40).

CONCLUSIONS

Les deux problèmes principaux que nous nous sommes posés au début de ce travail ont été de décrire les excitations élémentaires d'un système de bosons en interaction et de calculer le couplage entre ces excitations et la lumière.

Les excitations ont apparu comme des fluctuations de densité que l'on peut caractériser par le spectre ϵ_k et l'amplitude $Z(k)$ où k est le vecteur d'onde de l'excitation. Les deux grandeurs peuvent être calculées approximativement si l'hamiltonian est représenté dans la base appropriée (la base des fonctions corrélées) et que l'on se limite à l'espace de Tamm-Dancoff. En particulier, le spectre s'obtient, en calculant le déterminant de la matrice dynamique. Dans ce contexte, nous avons analysé la théorie des variables collectives de Sunakawa et démontré qu'elle est équivalente à celle de Feenberg pourvu que l'interaction à deux corps soit remplacée par un potentiel effectif bien déterminé. En même temps, nous avons obtenu une nouvelle approximation des corrélations à trois corps. Par la suite, nous avons examiné les effets de dégénérescence et trouvé des arguments (pas une preuve rigoureuse) pour la stabilité du spectre (chapitre I).

Cependant, nous n'avons pas calculé numériquement ϵ_k et $Z(k)$, mais utilisé les expériences de diffusion de neutrons par lesquelles ces deux fonctions sont mesurées directement. Nous avons fait une analyse des effets multiphononiques, en particulier de leur influence sur la détermination expérimentale de ϵ_k et de la possibilité de résonances (la "deuxième branche" du spectre) (chapitre II).

Quant au deuxième problème (le couplage entre les fluctuations de densité et le champ électromagnétique), nous avons développé une théorie générale de la diffusion de lumière dans les liquides diélectriques en exprimant la section efficace par des fonctions de corrélation de densité. Au premier ordre dans

les fluctuations, ce sont les longues longueurs d'onde qui contribuent de sorte que le modèle de dipôles ponctuels et la description hydrodynamique sont appropriés. Au deuxième ordre où les courtes longueurs d'onde sont importantes, le modèle de dipôles ponctuels doit être modifié parce qu'à courte distance, l'interaction électromagnétique entre deux atomes excités est plus compliquée qu'une interaction dipolaire. Nous avons proposé de résoudre ce problème à l'aide d'un facteur de forme qui coupe l'interaction dipolaire à courte distance (chapitre III).

Finalement, nous avons appliqué la théorie générale à l'hélium superfluide en utilisant les valeurs expérimentales de ϵ_k et de $Z(k)$. Le terme du premier ordre de la section efficace de diffusion contribue surtout à la diffusion de Brillouin tandis que le deuxième ordre représente la partie majeure de la diffusion de Raman. Le terme d'interférence entre le premier et le deuxième ordre est négligeable tant que l'on utilise de la lumière visible. Eu égard aux approximations faites, l'accord entre la théorie et l'expérience est satisfaisant. Les incertitudes principales proviennent du facteur de forme et des interactions résiduelles entre les excitations élémentaires. Il n'est pas raisonnable de fitter une des deux grandeurs aux expériences tant que celles-ci ne sont pas plus précises. De même, on ne peut pas affirmer à présent que l'existence d'un état lié roton-roton ait été prouvée par les expériences de diffusion de Raman (chapitre IV).

Appendice A : Le formalisme des fonctions corrélées

1. Démonstration de la relation fondamentale (I.23) (voir J2)

Soit $\psi_a = F_a \psi_0$ et $\psi_b = F_b \psi_0$ où ψ_0 est l'état fondamental et les fonctions F_a et F_b dépendent des coordonnées $r_1 \dots r_N$. Nous supposons le système enfermé dans une boîte de volume Ω et nous imposons des conditions périodiques aux bords (périodicité de ψ_0 , F_a , F_b et de leurs dérivées normales à la surface). Nous choisissons ψ_0 réel. Il s'agit de calculer l'élément de matrice

$$(\psi_a, (\mathcal{H} - E_0) \psi_b) = \int d\nu_{1, \dots, N} F_a^* \psi_0 \left[-\frac{1}{2m} \sum_i \Delta_i + V - E_0 \right] F_b \psi_0 \quad (1)$$

où E_0 est l'énergie de l'état fondamental. En utilisant les relations suivantes :

$$\left(-\frac{1}{2m} \sum_i \Delta_i + V - E_0 \right) \psi_0 = 0$$

$$\Delta_i F_b \psi_0 = (\Delta_i F_b) \psi_0 + 2 \vec{\nabla}_i \psi_0 \cdot \vec{\nabla}_i F_b + F_b \Delta_i \psi_0$$

nous avons :

$$(\psi_a, (\mathcal{H} - E_0) \psi_b) = -\frac{1}{2m} \sum_i \int d\nu_{1, \dots, N} F_a^* \psi_0 \left[(\Delta_i F_b) \psi_0 + 2 \vec{\nabla}_i \psi_0 \cdot \vec{\nabla}_i F_b \right]$$

L'intégrant peut être transformé de la manière suivante :

$$\begin{aligned} F_a^* \psi_0 \left[(\Delta_i F_b) \psi_0 + 2 \vec{\nabla}_i \psi_0 \cdot \vec{\nabla}_i F_b \right] &= \psi_0^2 F_a^* \Delta_i F_b + F_a^* \vec{\nabla}_i \psi_0^2 \cdot \vec{\nabla}_i F_b \\ &= \vec{\nabla}_i \cdot (\psi_0^2 F_a^* \vec{\nabla}_i F_b) - \psi_0^2 \vec{\nabla}_i F_a^* \cdot \vec{\nabla}_i F_b \end{aligned}$$

d'où :

$$(\psi_a, (\mathcal{H} - E_0) \psi_b) = -\frac{1}{2m} \sum_i \left\{ \int d\nu_{1, \dots, N} \vec{\nabla}_i \cdot (\psi_0^2 F_a^* \vec{\nabla}_i F_b) - \int d\nu_{1, \dots, N} \psi_0^2 \vec{\nabla}_i F_a^* \cdot \vec{\nabla}_i F_b \right\}$$

Le premier terme est transformé en intégrale de surface à l'aide du théorème de Gauss et s'annule en vertu des conditions périodiques. Nous obtenons finalement :

$$(\psi_a, (\mathcal{H} - E_0) \psi_b) = \frac{1}{2m} \sum_i \int d\mathbf{r}_{1,\dots,N} \psi_0^2 \vec{\nabla}_i F_{a1}^* \cdot \vec{\nabla}_i F_b \quad (2)$$

q.e.d.

2. Construction de la base orthonormée

$$\text{Soit } |\vec{k}\rangle \equiv \mathcal{S}_{\vec{k}}^+ \psi_0 \quad \text{et} \quad |\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle \equiv \mathcal{S}_{\vec{k}_1}^+ \mathcal{S}_{\vec{k}_2}^+ \psi_0$$

où ψ_0 est l'état fondamental et

$$\mathcal{S}_{\vec{k}}^+ \equiv \sum_{i=1}^N e^{-i\vec{k}\vec{r}_i}$$

La norme de ces états est reliée au facteur de structure $S(k)$ (voir I.7) :

$$(\vec{k} | \vec{k}) = N S(k)$$

$$(\vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2) = N^2 \left(1 + \delta_{\vec{k}_1, -\vec{k}_2} \right) S(k_1) S(k_2) + O(N) \quad (3)$$

Pour une démonstration de la deuxième relation, voir F2 ou J3. Comme nous aimerions un système d'états orthonormés, nous définissons :

$$|\vec{k}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N S(k)}} |\vec{k}\rangle \quad (4)$$

$$|\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle = \alpha |\vec{k}_1 + \vec{k}_2\rangle + \beta |\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle$$

et déterminons les coefficients α, β par les conditions de normalisation :

$$1 = \langle \vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2 \rangle = \alpha^2 \langle \vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \rangle + 2\alpha\beta \langle \vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2 \rangle + \beta^2 \langle \vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2 \rangle$$

et d'orthogonalité :

$$0 = \langle \vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \rangle = \alpha (\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1 + \vec{k}_2) + \beta (\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)$$

Les éléments de matrice $(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)$ sont de l'ordre N. En les négligeant par rapport à $(\vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)$ on a :

$$\beta^2 = \frac{1}{(\vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)}$$

$$\alpha = - \frac{(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)}{(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1 + \vec{k}_2) \sqrt{(\vec{k}_1, \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)}}$$

d'où, pour $\vec{k}_1 \neq \pm \vec{k}_2$, nous obtenons à l'aide de (3) :

$$|\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle = \frac{1}{N \sqrt{S(k_1) S(k_2)}} \left\{ |\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle - \frac{(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)}{N S(\vec{k}_1 + \vec{k}_2)} |\vec{k}_1 + \vec{k}_2\rangle \right\} \quad (5)$$

Pour calculer explicitement les éléments de matrice $(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)$ il faut faire des approximations. Prenons comme exemple l'approximation de convolution (voir W5, W6). On a

$$(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 | \vec{k}_1, \vec{k}_2)_{conv.} = N S(k_1) S(k_2) S(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \quad (6)$$

Il est difficile d'estimer la validité de cette approximation en général, mais elle semble être exacte aux deux limites de très grands et de très petits vecteurs d'onde, respectivement (F2). La même approximation peut être utilisée à évaluer les produits scalaires non-diagonaux entre les états à deux phonons (F3) :

$$(\vec{q}, \vec{k} - \vec{q} | \vec{l}, \vec{k} - \vec{l})_{conv} = N^2 S(l) S(\vec{k} - \vec{l}) \left[\delta_{\vec{k}, \vec{l} + \vec{q}} + \delta_{\vec{q}, \vec{l}} \right]$$

$$+ N S(l) S(\vec{k} - \vec{l}) S(q) S(\vec{k} - \vec{q}) \left[S(k) + S(\vec{k} - \vec{l} - \vec{q}) + S(\vec{l} - \vec{q}) - 2 \right] \quad (7)$$

pourvu que $\vec{q} \neq 0, \vec{k}; \vec{l} \neq 0, \vec{k}$.

A l'aide de (5), (6) et (7) nous obtenons :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q}, \vec{k}-\vec{q} | \vec{l}, \vec{k}-\vec{l} \rangle_{conv.} &= \delta_{\vec{k}, \vec{l}+\vec{q}} + \delta_{\vec{q}, \vec{l}} \\ &+ \frac{1}{N} \sqrt{S(q)S(l)S(\vec{k}-\vec{q})S(\vec{k}-\vec{l})} \left\{ S(k) + S(\vec{k}-\vec{l}-\vec{q}) + S(\vec{l}-\vec{q}) - 3 \right\} \end{aligned} \quad (8)$$

3. Evaluation des éléments de matrice de l'hamiltonian

En utilisant la relation (2) pour les états $|\vec{k}\rangle$ et $|\vec{q}, \vec{k}-\vec{q}\rangle$, nous obtenons :

$$(\vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k}) = N \frac{k^2}{2m} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} (\vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q}) &= \frac{1}{2m} \sum_i \int d\vec{r}_i \psi_0^2(-i\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{r}_i} \left(i\vec{q} e^{i\vec{q}\vec{r}_i} s_{\vec{k}-\vec{q}}^+ + i(\vec{k}-\vec{q}) e^{i(\vec{k}-\vec{q})\vec{r}_i} s_{\vec{q}}^+ \right) \\ &= \frac{1}{2m} \left\{ \vec{k} \cdot \vec{q} (\vec{k}-\vec{q} | \vec{k}-\vec{q}) + \vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) (\vec{q} | \vec{q}) \right\} \\ &= \frac{N}{2m} \left\{ \vec{k} \cdot \vec{q} S(\vec{k}-\vec{q}) + \vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) S(q) \right\} \end{aligned} \quad (10)$$

et de façon analogue :

$$\begin{aligned} (\vec{l}, \vec{k}-\vec{l} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q}) &= \frac{1}{2m} \left\{ \vec{l} \cdot \vec{q} (\vec{k}-\vec{l} | \vec{q}-\vec{l}, \vec{k}-\vec{q}) + \vec{l} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) (\vec{k}-\vec{l} | \vec{k}-\vec{q}-\vec{l}, \vec{q}) \right. \\ &\quad \left. + (\vec{k}-\vec{l}) \cdot \vec{q} (\vec{l} | \vec{q}, \vec{l}-\vec{k}, \vec{k}-\vec{q}) + (\vec{k}-\vec{l}) \cdot (\vec{k}-\vec{q}) (\vec{l} | \vec{l}-\vec{q}, \vec{q}) \right\} \\ &= \frac{N^2}{2m} \left\{ q^2 S(\vec{k}-\vec{q}) + |\vec{k}-\vec{q}|^2 S(q) \right\} (\delta_{\vec{l}, \vec{q}} + \delta_{\vec{l}, \vec{k}-\vec{q}}) + O(N) \end{aligned} \quad (11)$$

Les éléments non-diagonaux peuvent être estimés par l'approximation de convolution (6). Alors, pour $\vec{l} \neq \vec{q}$, $\vec{k}-\vec{q}$:

$$\begin{aligned} (\vec{l}, \vec{k}-\vec{l} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k}-\vec{q})_{conv.} &= \frac{N}{2m} \left\{ \vec{l} \cdot \vec{q} S(\vec{k}-\vec{l}) S(\vec{q}-\vec{l}) S(\vec{k}-\vec{q}) + \vec{l} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) S(\vec{k}-\vec{l}) S(\vec{k}-\vec{q}-\vec{l}) S(q) \right. \\ &\quad \left. + (\vec{k}-\vec{l}) \cdot \vec{q} S(l) S(\vec{k}-\vec{q}-\vec{l}) S(\vec{k}-\vec{q}) + (\vec{k}-\vec{l}) \cdot (\vec{k}-\vec{q}) S(l) S(\vec{l}-\vec{q}) S(q) \right\} \end{aligned} \quad (12)$$

A l'aide de ces expressions, nous sommes en mesure de calculer les éléments de matrice correspondant à la base $|\vec{k}\rangle$, $|\vec{k}_1, \vec{k}_2\rangle$ (équations (4) et (5)) :

$$\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{k} \rangle = \frac{k^2}{2m S(k)} \equiv \varepsilon_k^F \quad (13)$$

$$\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle = \frac{k^2}{2m \sqrt{N S(k) S(q) S(\vec{k} - \vec{q})}} \left\{ S(q) + \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{k^2} [S(\vec{k} - \vec{q}) - S(q)] - \frac{(\vec{k} \cdot \vec{q} \vec{k} - \vec{q})}{N S(k)} \right\} \quad (14)$$

Ces deux relations sont exactes. On a aussi :

$$\langle \vec{l}, \vec{k} - \vec{l} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle = \varepsilon_q^F + \varepsilon_{\vec{k} - \vec{q}}^F + O\left(\frac{1}{N}\right) \quad \text{si } \vec{l} = \vec{q} \text{ ou } \vec{l} = \vec{k} - \vec{q} \quad (15)$$

Dans l'approximation de convolution, on obtient à l'aide de (6) :

$$\langle \vec{k} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle_{\text{conv}} = \frac{k^2}{2m \sqrt{N S(k) S(q) S(\vec{k} - \vec{q})}} \left\{ S(q) [1 - S(\vec{k} - \vec{q})] + \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{k^2} [S(\vec{k} - \vec{q}) - S(q)] \right\} \quad (16)$$

et à l'aide de (12) :

$$\begin{aligned} \langle \vec{l}, \vec{k} - \vec{l} | \mathcal{H} - E_0 | \vec{q}, \vec{k} - \vec{q} \rangle_{\text{conv}} &= \frac{1}{2m N} \frac{k^2}{\sqrt{S(l) S(q) S(\vec{k} - \vec{q}) S(\vec{k} - \vec{l})}} \\ &\times \left\{ S(l) S(q) \left[S(\vec{k} - \vec{l}) (S(\vec{k} - \vec{q}) - 1) + S(\vec{l} - \vec{q}) - S(\vec{k} - \vec{q}) \right] \right. \\ &+ \frac{\vec{k} \cdot \vec{l}}{k^2} S(q) \left[S(\vec{k} - \vec{l}) S(\vec{k} - \vec{l} - \vec{q}) - S(\vec{l} - \vec{q}) S(l) + S(\vec{k} - \vec{q}) (S(l) - S(\vec{k} - \vec{l})) \right] \\ &+ \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{k^2} S(l) \left[S(\vec{k} - \vec{q}) S(\vec{k} - \vec{l} - \vec{q}) - S(\vec{l} - \vec{q}) S(q) + S(\vec{k} - \vec{l}) (S(q) - S(\vec{k} - \vec{q})) \right] \\ &+ \frac{\vec{l} \cdot \vec{q}}{k^2} S(l) \left[S(\vec{q} - \vec{l}) S(q) - S(\vec{k} - \vec{q} - \vec{l}) S(\vec{k} - \vec{q}) \right] \\ &\left. + \frac{\vec{l} \cdot \vec{q}}{k^2} S(\vec{k} - \vec{l}) \left[S(\vec{q} - \vec{l}) S(\vec{k} - \vec{q}) - S(\vec{k} - \vec{q} - \vec{l}) S(q) \right] \right\} \quad (17) \end{aligned}$$

pourvu que $\vec{l} \neq \vec{q}$, $\vec{k} - \vec{q}$ (éléments non-diagonaux).

Appendice B : Le gaz de Bose dilué (B5, B6)

Soit

$$\mathcal{H} = \sum_{\vec{k}} \frac{k^2}{2m} a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \frac{1}{2\Omega} \sum_{\vec{q}, \vec{k}, \vec{k}'} V(q) a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}+\vec{q}} a_{\vec{k}-\vec{q}} \quad (1)$$

l'hamiltonian du système en seconde quantification où les opérateurs de création $a_{\vec{k}}^+$ et d'annihilation $a_{\vec{k}}$ satisfont aux règles de commutation habituelles de bosons. Si l'interaction est faible on s'attend qu'à température zéro un nombre macroscopique N_0 des particules se trouve dans l'état $\vec{k} = 0$ (condensé). Donc les opérateurs a_0 , a_0^+ peuvent être traités en bonne approximation comme des nombres :

$$a_0 = a_0^+ = \sqrt{N_0} \quad (2)$$

En utilisant encore que

$$N_0 = N - \sum_{\vec{k} \neq 0} a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} \quad (3)$$

on peut écrire l'hamiltonian comme $\mathcal{H} = E_0 + \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_3 + \mathcal{H}_4$ (4)
où $(\xi \equiv \frac{N}{\Omega})$:

$$\begin{aligned} E_0 &= \frac{N}{2} \xi V(0) \\ \mathcal{H}_0 &= \sum_{\vec{k}} \frac{k^2}{2m} a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \xi \sum_{\vec{k}}' V(k) a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \frac{\xi}{2} \sum_{\vec{k}}' V(k) [a_{\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}}^+ + a_{\vec{k}} a_{-\vec{k}}] \\ \mathcal{H}_3 &= \frac{\sqrt{N_0}}{\Omega} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'}' V(k) a_{\vec{k}}^+ (a_{\vec{k}}^+ + a_{-\vec{k}}) a_{\vec{k}+\vec{k}'} \\ \mathcal{H}_4 &= \frac{1}{2\Omega} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q}}' V(q) a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}+\vec{q}} a_{\vec{k}-\vec{q}} - \frac{1}{2\Omega} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'}' V(k) a_{\vec{k}}^+ [3a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + a_{\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}} + a_{\vec{k}} a_{-\vec{k}}] a_{\vec{k}'} \end{aligned} \quad (5)$$

Par la notation Σ' , tous les termes contenant des opérateurs $a_{\vec{k}}$ ou $a_{\vec{k}}^+$ avec indice $\vec{k} \neq 0$ sont exclus. Pour diagonaliser $\mathcal{H}_0$ nous effectuons une transformation de Bogoliubov :

$$a_{\vec{k}} = \frac{1}{\sqrt{1-A_k^2}} (b_{\vec{k}} + A_{\vec{k}} b_{-\vec{k}}^+) \quad (6)$$

Les opérateurs $b_{\vec{k}}, b_{\vec{k}}^+$ satisfont alors aux mêmes relations de commutation que $a_{\vec{k}}$ et $a_{\vec{k}}^+$. Les coefficients $A_{\vec{k}}$ peuvent être choisis réels. En demandant encore que

$$b_{\vec{k}} \longrightarrow a_{\vec{k}} \quad \text{pour} \quad V(k) \longrightarrow 0$$

les $A_{\vec{k}}$ sont définis uniquement. On obtient :

$$A_{\vec{k}} = \frac{1}{B_{\vec{k}}} \left(\sqrt{2B_{\vec{k}} + 1} - 1 \right) \quad (7)$$

où

$$B_{\vec{k}} \equiv \frac{2m \xi V(k)}{k^2} \quad (8)$$

L'hamiltonian transformé a la forme suivante :

$$\mathcal{H} = E_0^B + \mathcal{H}_0^B + \mathcal{H}_3^B + \mathcal{H}_4^B \quad (9)$$

En particulier :

$$\mathcal{H}_0^B = \sum_{\vec{k}} \varepsilon_{\vec{k}}^B b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}} \quad (10)$$

$$\text{où} \quad \varepsilon_{\vec{k}}^B \equiv \frac{k^2}{2m} \sqrt{2B_{\vec{k}} + 1} \quad (11)$$

est appelé spectre de Bogoliubov. Il est équivalent au spectre de Feynman (I.6) pourvu qu'on évalue le facteur de structure dans l'approximation correspondante :

$$\begin{aligned} S(k) &\equiv \frac{1}{N} \langle 0 | \xi_{\vec{k}}^+ \xi_{\vec{k}}^+ | 0 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}, \vec{l}} \langle 0 | a_{\vec{q}}^+ a_{\vec{q}+\vec{k}}^+ a_{\vec{l}}^+ a_{\vec{l}-\vec{k}}^+ | 0 \rangle \\ &\approx \frac{N_0}{N} \langle 0 | \left\{ a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}}^+ + a_{-\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}}^+ + a_{-\vec{k}}^+ a_{\vec{k}}^+ + a_{\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}}^+ \right\} | 0 \rangle \\ &= \frac{N_0}{N} \frac{(1+A_{\vec{k}})^2}{1-A_{\vec{k}}^2} = \frac{N_0}{N} \frac{1}{\sqrt{2B_{\vec{k}}+1}} \approx \frac{1}{\sqrt{2B_{\vec{k}}+1}} \equiv S_{\vec{k}}^B \end{aligned} \quad (12)$$

d'où

$$\varepsilon_{\vec{k}}^B = \frac{k^2}{2m S_{\vec{k}}^B} \quad (13)$$

L'interaction à trois phonons $\mathcal{H}_3^B$ a la forme suivante :

$$\mathcal{H}_3^B = \frac{\sqrt{N_0}}{\Omega} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'}' V(k) \frac{1}{\sqrt{(1-A_k^2)(1-A_{k'}^2)(1-A_{\vec{k}+\vec{k}'}^2)}} \\ \times (b_{\vec{k}}^+ + A_k b_{-\vec{k}})(b_{\vec{k}'}^+ + A_{k'} b_{-\vec{k}'})(b_{\vec{k}+\vec{k}'}^+ + A_{\vec{k}+\vec{k}'} b_{-\vec{k}-\vec{k}'})$$

A l'aide de (7), (8) et (12) on peut exprimer le couplage par S_k^B . En regroupant les différents termes on obtient :

$$\mathcal{H}_3^B = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} \left\{ \Gamma_{\vec{k}, \vec{k}'}^B b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}'}^+ b_{\vec{k}+\vec{k}'} + \Delta_{\vec{k}, \vec{k}'}^B b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}'}^+ b_{-\vec{k}-\vec{k}'} + h.c. \right\} \quad (14)$$

où

$$\Gamma_{\vec{k}, \vec{k}'}^B \equiv \frac{1}{16m\varphi} \sqrt{\frac{N_0}{\Omega}} \frac{1}{\sqrt{S_k^B S_{k'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B}} \left\{ 2 \frac{k^2}{S_k^B} (1-S_k^2) (1+S_k^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B) \right. \\ \left. - \frac{|\vec{k}+\vec{k}'|^2}{S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B} (1-S_k^B) (1+S_{k'}^B) (1-S_{\vec{k}+\vec{k}'}^2) \right\} \quad (15)$$

$$\Delta_{\vec{k}, \vec{k}'}^B \equiv -\frac{1}{16m\varphi} \sqrt{\frac{N_0}{\Omega}} \frac{1}{\sqrt{S_k^B S_{k'}^B S_{\vec{k}+\vec{k}'}^B}} \frac{k^2}{S_k^B} (1-S_k^2) (1+S_{k'}^B) (1-S_{\vec{k}+\vec{k}'}^2) \quad (16)$$

Appendice C : Evaluation du déterminant de la matrice dynamique

Dans l'espace de Tamm-Dancoff l'équation de Schrödinger est équivalente à l'équation caractéristique

$$D(x) = 0$$

où, pour des vertices constants, $D(x)$ a la forme suivante (voir I.42) :

$$D(x) = \begin{vmatrix} x & a & a & \dots & a \\ a & y_1(x) & b & \dots & b \\ a & b & y_2(x) & \dots & b \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a & b & b & \dots & y_n(x) \end{vmatrix} \quad (1)$$

Nous pouvons supposer que $x \neq 0$. Effectuons quelques transformations élémentaires. Nous soustrayons d'abord la deuxième ligne des lignes suivantes, ensuite $\frac{a}{x}$ fois la première ligne de la deuxième et finalement la dernière ligne des lignes contenant $y_2, y_3, \dots, y_{n-1}$. Alors

$$D(x) = \begin{vmatrix} x & a & a & \dots & a \\ 0 & y_1 - \frac{a^2}{x} & b - \frac{a^2}{x} & \dots & b - \frac{a^2}{x} \\ 0 & 0 & y_2 - b & \dots & b - y_n \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & b - y_1 & 0 & \dots & y_n - b \end{vmatrix} = x \begin{vmatrix} y_1 - \frac{a^2}{x} & b - \frac{a^2}{x} & \dots & b - \frac{a^2}{x} \\ 0 & y_2 - b & \dots & b - y_n \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ b - y_1 & 0 & \dots & y_n - b \end{vmatrix}$$

Nous développons selon la première colonne, d'où

$$D(x) = x \left\{ \left(y_1 - \frac{a^2}{x} \right) \prod_{i=2}^n (y_i - b) + (-1)^{n-1} (y_1 - b) \begin{vmatrix} b - \frac{a^2}{x} & b - \frac{a^2}{x} & \dots & -b - \frac{a^2}{x} \\ y_2 - b & & & y_n - b \\ \vdots & & & \vdots \\ 0 & y_{n-1} - b & & y_n - b \end{vmatrix} \right\} \quad (2)$$

(nous avons changé de signe dans la dernière colonne). Le déterminant qui reste peut être évalué par induction.

Proposition :

$$M_n \equiv \begin{vmatrix} \alpha & \alpha & \dots & \alpha & -\alpha \\ z_1 & 0 & \dots & 0 & z_n \\ 0 & z_2 & \dots & 0 & z_n \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & z_{n-1} & z_n \end{vmatrix} = \alpha (-1)^n \sum_{i=1}^n \prod_{j \neq i} z_j \quad (3)$$

Démonstration

$$n=2 : M_2 = \alpha z_2 + \alpha z_1 = \alpha (-1)^2 \sum_{i=1}^2 \prod_{j \neq i} z_j$$

Supposons que (3) soit juste pour $n-1$:

$$M_{n-1} = \alpha (-1)^{n-1} \sum_{i=1}^{n-1} \prod_{j \neq i} z_j \quad (4)$$

M_n peut être relié à M_{n-1} de la façon suivante : En soustrayant la dernière ligne des autres (sauf de la première) on a :

$$M_n = \begin{vmatrix} \alpha & \dots & \alpha & \alpha & -\alpha \\ z_1 & \dots & 0 & -z_{n-1} & 0 \\ \vdots & & & & \\ 0 & \dots & z_{n-2} & -z_{n-1} & 0 \\ 0 & \dots & 0 & z_{n-1} & z_n \end{vmatrix} = (-1)^n \begin{vmatrix} -\alpha & \alpha & \dots & \alpha & -\alpha \\ 0 & z_1 & \dots & 0 & z_{n-1} \\ \vdots & & & & \\ 0 & 0 & \dots & z_{n-2} & z_{n-1} \\ z_n & 0 & \dots & 0 & -z_{n-1} \end{vmatrix}$$

où nous avons fait une permutation de colonnes et ensuite changé le signe de la dernière colonne. En développant selon la première colonne, il vient :

$$M_n = (-1)^n \left\{ \alpha \prod_{i=1}^{n-1} z_i + (-1)^{n-1} z_n M_{n-1} \right\}$$

d'où, à l'aide de (4) :

$$M_n = (-1)^n \left\{ \alpha \prod_{i=1}^{n-1} z_i + \alpha z_n \sum_{i=1}^{n-1} \prod_{j \neq i} z_j \right\} = (-1)^n \alpha \sum_{i=1}^n \prod_{j \neq i} z_j \quad \text{q.e.d.}$$

Calculons maintenant le déterminant (2) :

$$\begin{aligned} D(x) &= x \left\{ \left(y_1 - \frac{a^2}{x} \right) \prod_{i=2}^n (y_i - b) + (-1)^{n-1} (y_1 - b) \left(b - \frac{a^2}{x} \right) (-1)^{n-1} \sum_{i=2}^n \prod_{j \neq i} (y_j - b) \right\} \\ &= x \left\{ \prod_{i=1}^n (y_i - b) + \left(b - \frac{a^2}{x} \right) \sum_{i=1}^n \prod_{j \neq i} (y_j - b) \right\} \\ &= x \prod_{i=1}^n (y_i - b) \left\{ 1 + \left(b - \frac{a^2}{x} \right) \sum_{j=1}^n \frac{1}{y_j - b} \right\} \end{aligned} \quad (5)$$

Appendice D : $S_{II}(k, \omega)$ dans l'approximation de Feynman-Cohen

Dans l'approximation de Feynman-Cohen, la partie multi-phononique du facteur de structure dynamique est donnée par (II.23) :

$$S_{II}(k, \omega) = \frac{1}{8N} \sum_{\vec{q} \neq \vec{k}, 0} |\tau_{\vec{k}, \vec{q}} + \tau_{\vec{k}, \vec{k}-\vec{q}}|^2 \delta(\omega - \varepsilon_q - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}) \quad (1)$$

où les coefficients $\tau_{\vec{k}, \vec{q}}$ ont la forme suivante (voir (II.26)) :

$$\tau_{\vec{k}, \vec{q}} = -8\pi A \varepsilon_0 \frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} \sqrt{Z(q) Z(\vec{k}-\vec{q})} \quad (2)$$

Alors on a dans la limite thermodynamique :

$$S_{II}(k, \omega) = \frac{A^2 \varepsilon_0}{\pi} \int d^3q Z(q) Z(\vec{k}-\vec{q}) \left[\frac{\vec{k} \cdot \vec{q}}{q^2} + \frac{\vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q})}{|\vec{k}-\vec{q}|^2} \right]^2 \delta(\omega - \varepsilon_q - \varepsilon_{\vec{k}-\vec{q}}) \quad (3)$$

Comme Jackson dans la réf. J1 nous introduisons des coordonnées q, l, ψ définies dans la fig. 1.

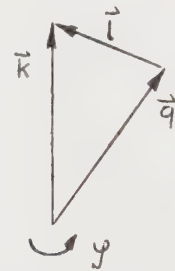


Fig. 1 : Coordonnées

On a :

$$\begin{aligned} \vec{k} \cdot \vec{q} &= \frac{1}{2} (k^2 + q^2 - l^2) \\ \vec{k} \cdot (\vec{k}-\vec{q}) &= \vec{k} \cdot \vec{l} = \frac{1}{2} (k^2 + l^2 - q^2) \\ d^3q &= \frac{q^l}{k} dq dl d\psi \end{aligned} \quad (4)$$

En tenant compte du fait que l'intégrant dans (3) ne dépend pas de φ et est symétrique en q et l il vient :

$$S_{\perp}(k, \omega) = A^2 \frac{g_0}{k} \int_0^{\infty} dq \, q \, Z(q) \int_{\text{Max}(k-q, q)}^{k+q} dl \, l \, Z(l) \left[\frac{k^2 + q^2 - l^2}{q^2} + \frac{k^2 + l^2 - q^2}{l^2} \right]^2 \delta(\omega - \varepsilon_q - \varepsilon_l) \quad (5)$$

Le domaine d'intégration est la partie hachurée de la figure 2.

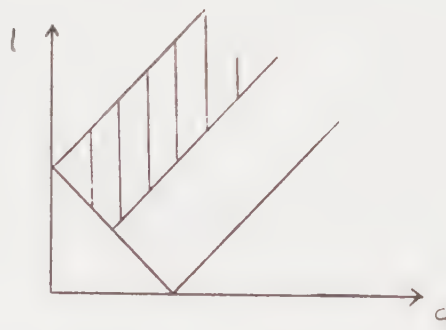


Fig. 2 : Domaine d'intégration.

1. $k = k_0, \omega \gtrsim \Delta_0$

Pour ce choix (les grandeurs k_0 et Δ_0 sont les paramètres du roton, voir fig. 3), on voit facilement que les seules contributions à l'intégrale (5) proviennent des régions où q est petit et l est proche de k_0 . Donc on a :

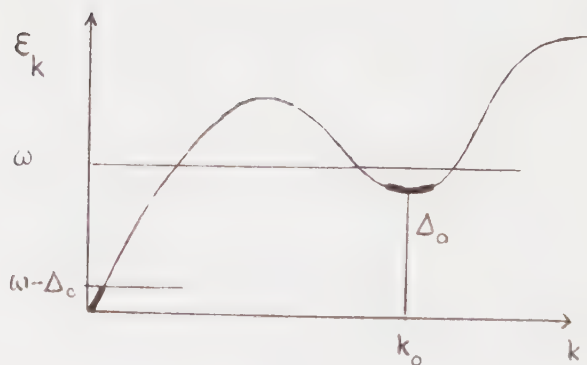


Fig. 3 : Le spectre d'excitation

$$\varepsilon_q = sq$$

$$\varepsilon_l = \Delta_0 + \frac{(l - k_0)^2}{2\mu}$$

(6)

où s est la vitesse du son et μ est la "masse" du roton. A l'aide de la substitution

$$p = l - k_0$$

il vient :

$$S_{II}(k_0, \omega) = A^2 \frac{\rho_0}{k_0} \int_0^\infty dq \, q \, Z(q) \int_{-q}^q dp \, Y(p, q) \delta(\omega - sq - \Delta_0 - \frac{p^2}{2\mu}) \quad (7)$$

où

$$Y(p, q) \equiv (k_0 + p) Z(k_0 + p) \left[2 - \frac{2k_0 p + p^2}{q^2} + \frac{k_0^2 - q^2}{(k_0 + p)^2} \right]^2 \approx 4k_0^3 Z(k_0) \frac{p^2}{q^4} \quad (8)$$

Il y a des solutions de l'équation

$$\omega - sq - \Delta_0 - \frac{p^2}{2\mu} = 0$$

dans le domaine d'intégration

$$|p| \leq q$$

si et seulement si

$$q_1 \equiv -\mu s + \sqrt{(\mu s)^2 + 2\mu(\omega - \Delta_0)} \leq q \leq \frac{\omega - \Delta_0}{s} \equiv q_2 \quad (9)$$

Elles sont :

$$p_{1,2} = \pm \sqrt{2\mu(\omega - \Delta_0 - sq)} = \pm \sqrt{2\mu s (q_2 - q)} \quad (10)$$

A l'aide de la formule

$$\delta(\omega - sq - \Delta_0 - \frac{p^2}{2\mu}) = \frac{\mu}{|p|} \left[\delta(p - p_1) + \delta(p - p_2) \right]$$

et de (7) on obtient :

$$\begin{aligned}
 S_{II}(k_0, \omega) &= A^2 \frac{\rho_0}{\kappa_0} \mu \int_{q_1}^{q_2} dq \, q \, Z(q) \sum_i \frac{1}{|P_i|} Y(F, q) \\
 &= 8 A^2 \rho_0 \kappa_0^2 Z(k_0) \mu \frac{\sqrt{2\mu s}}{2ms} \int_{q_1}^{q_2} dq \frac{\sqrt{q_2 - q}}{q^2}
 \end{aligned} \quad (11)$$

où on a utilisé (8) et (10) et on a tenu compte du comportement asymptotique de $Z(k)$:

$$Z(k) \underset{k \rightarrow 0}{\sim} S(k) \sim \frac{k}{2ms} \quad (12)$$

En posant :

$$q = q_2 (1-x)$$

et en développant

$$q_1 \approx q_2 - \frac{1}{2\mu s} q_2^2$$

il vient

$$\int_{q_1}^{q_2} dq \frac{\sqrt{q_2 - q}}{q^2} = \frac{1}{\sqrt{q_2}} \int_0^{\frac{q_2}{2\mu s}} dx \frac{\sqrt{x}}{(1-x)^2} \approx \frac{2}{3} \frac{1}{\sqrt{2\mu s}} \frac{q_2}{2\mu s}$$

d'où, en premier ordre de $\frac{\omega - \Delta_0}{\mu s^2}$:

$$S_{II}(k_0, \omega) = \frac{4}{3} A^2 \rho_0 \kappa_0^2 Z(k_0) \frac{1}{ms} (\omega - \Delta_0) \quad (13)$$

2. $S_{II}(k)$ pour $k \rightarrow 0$

A l'aide de (5) on a :

$$S_{II}(k) = A^2 \frac{\rho_0}{k} \int_0^\infty dq \, q \, Z(q) \int_{\text{Max}(k-q, q)}^{k+q} dl \, l \, Z(l) \left[\frac{l^2 + q^2 - l^2}{2} + \frac{k^2 + l^2 - q^2}{2} \right]$$

On peut voir facilement que les domaines $q, l \leq k$ donnent une contribution proportionnelle à k^5 . Pour les autres domaines nous posons

$$l = q(1+x)$$

et développons l'intégrant en puissances de x :

$$\begin{aligned} \left[\frac{k^2 + q^2 - l^2}{q^2} + \frac{k^2 + l^2 - q^2}{l^2} \right]^2 &\approx \left[\frac{k^2}{q^2} - 2x - x^2 + \frac{k^2}{q^2} + (2x + x^2)(1-2x) \right]^2 \\ &\approx \left[2 \frac{k^2}{q^2} - 4x^2 \right]^2 = 4 \left[\frac{k^4}{q^4} - 4 \frac{k^2}{q^2} x^2 + 4x^4 \right] \end{aligned}$$

Alors il vient :

$$\begin{aligned} S_{II}(k) &\approx 4A^2 \frac{\epsilon_0}{k} \int_0^\infty dq q^3 \bar{Z}^2(q) \int_0^{\frac{k}{q}} dx \left[\frac{k^4}{q^4} - 4 \frac{k^2}{q^2} x^2 + 4x^4 \right] \\ &= B k^4 \end{aligned} \tag{14}$$

$$\text{où } B \equiv \frac{28}{15} A^2 \epsilon_0 \int_0^\infty dq \left[\frac{\bar{Z}(q)}{q} \right]^2 \tag{15}$$

Appendice E : Le propagateur du champ électrique

1. Evaluation du propagateur $\vec{F}(\vec{x}-\vec{x}', t-t')$

Le propagateur $F(\vec{x}-\vec{x}', t-t')$ est défini par la relation suivante (voir III.20 et III.21) :

$$\begin{aligned} \frac{1}{8\pi^2} \int d\omega e^{-i\omega t} (\omega^2 + \text{grad}_{\vec{x}} \cdot \text{div}_{\vec{x}}) \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \vec{P}(\vec{x}', t') \\ = \vec{F}(\vec{x}-\vec{x}', t-t') \vec{P}(\vec{x}', t') \end{aligned} \quad (1)$$

On a :

$$\begin{aligned} \text{div}_{\vec{x}} \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \vec{P}(\vec{x}', t') &= \vec{P}(\vec{x}', t') \cdot \text{grad}_{\vec{x}} \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \\ \text{grad}_{\vec{x}} \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} &= \frac{\vec{x}-\vec{x}'}{|\vec{x}-\vec{x}'|^2} (i\omega |\vec{x}-\vec{x}'| - 1) \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \end{aligned}$$

d'où

$$\begin{aligned} \text{grad}_{\vec{x}} \cdot \text{div}_{\vec{x}} \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \vec{P}(\vec{x}', t') \\ = \text{grad}_{\vec{x}} \left\{ \frac{\vec{P} \cdot (\vec{x}-\vec{x}')}{|\vec{x}-\vec{x}'|^2} (i\omega |\vec{x}-\vec{x}'| - 1) \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \right\} \\ = \frac{e^{i\omega(t'+|\vec{x}-\vec{x}'|)}}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \left\{ \frac{1}{|\vec{x}-\vec{x}'|^2} \left[\vec{P} (i\omega |\vec{x}-\vec{x}'| - 1) + \vec{P} \cdot (\vec{x}-\vec{x}') i\omega \frac{\vec{x}-\vec{x}'}{|\vec{x}-\vec{x}'|} \right] \right. \\ \left. - 2 \frac{\vec{x} \cdot \vec{x}'}{|\vec{x}-\vec{x}'|^4} \vec{P} \cdot (\vec{x}-\vec{x}') (i\omega |\vec{x}-\vec{x}'| - 1) + \frac{\vec{P} \cdot (\vec{x}-\vec{x}')}{|\vec{x}-\vec{x}'|^2} (i\omega |\vec{x}-\vec{x}'| - 1)^2 \frac{\vec{x}-\vec{x}'}{|\vec{x}-\vec{x}'|^2} \right\} \end{aligned}$$

$$= \frac{e^{i\omega(t' + |\vec{x} - \vec{x}'|)}}{|\vec{x} - \vec{x}'|^5} \left\{ -|\vec{x} - \vec{x}'|^2 \vec{P} + 3 \vec{P} \cdot (\vec{x} - \vec{x}') (\vec{x} - \vec{x}') \right. \\ \left. + i\omega \left[|\vec{x} - \vec{x}'|^3 \vec{P} - 3 |\vec{x} - \vec{x}'| \vec{P} \cdot (\vec{x} - \vec{x}') (\vec{x} - \vec{x}') \right] - \omega^2 |\vec{x} - \vec{x}'|^2 \vec{P} \cdot (\vec{x} - \vec{x}') (\vec{x} - \vec{x}') \right\}$$

Alors nous obtenons :

$$\left(\omega^2 + \text{grad}_{\vec{x}} \text{div}_{\vec{x}} \right) \frac{e^{i\omega(t' + |\vec{x} - \vec{x}'|)}}{|\vec{x} - \vec{x}'|} \vec{P}(\vec{x}', t') \\ = \frac{e^{i\omega(t' + |\vec{x} - \vec{x}'|)}}{|\vec{x} - \vec{x}'|^3} \left\{ \left(1 - i\omega |\vec{x} - \vec{x}'| \right) \left(3 (\hat{x} - \hat{x}') (\hat{x} - \hat{x}') - 1 \right) + \omega^2 |\vec{x} - \vec{x}'|^2 \left(1 - (\hat{x} - \hat{x}') (\hat{x} - \hat{x}') \right) \right\} \vec{P}(\vec{x}', t')$$

En comparant cette relation à (1), il vient

$$\vec{F}(\vec{\xi}, \tau) = \frac{1}{8\pi^2} \int d\omega e^{i\omega(\xi - \tau)} \frac{1}{\xi^3} \left\{ (1 - i\omega \xi) (3 \hat{\xi} \hat{\xi} - 1) + \omega^2 \xi^2 (1 - \hat{\xi} \hat{\xi}) \right\} \quad (2)$$

d'où

$$\vec{F}(\vec{\xi}, \omega) = \frac{1}{4\pi} e^{i\omega \xi} \frac{1}{\xi^3} \left\{ (1 - i\omega \xi) (3 \hat{\xi} \hat{\xi} - 1) + \omega^2 \xi^2 (1 - \hat{\xi} \hat{\xi}) \right\} \\ \approx \begin{cases} \frac{1}{4\pi} e^{i\omega \xi} \frac{\omega^2}{\xi} (1 - \hat{\xi} \hat{\xi}) & \omega \xi \gg 1 \\ \frac{1}{4\pi} \frac{1}{\xi^3} (3 \hat{\xi} \hat{\xi} - 1) & \omega \xi \ll 1 \end{cases} \quad (3)$$

2. La transformée de Fourier du propagateur dipolaire $\vec{G}(\vec{q})$

Le propagateur $\vec{G}(\vec{x})$ est défini par les équations (III.36), (III.39) et (III.40) :

$$\vec{G}(\vec{x}) = (1 - e^{-\lambda x}) \frac{1}{x^3} (3\hat{x}\hat{x} - 1) \quad (4)$$

Calculons donc la transformée de Fourier :

$$\begin{aligned} \vec{G}(\vec{q}) &= \int d^3x \, e^{-i\vec{q}\vec{x}} (1 - e^{-\lambda x}) \frac{1}{x^3} (3\hat{x}\hat{x} - 1) \\ &= \int \frac{dx}{x} (1 - e^{-\lambda x}) \int d\Omega_{\vec{x}} (3\hat{x}\hat{x} - 1) e^{-i\vec{q}\vec{x}} \end{aligned}$$

Le tenseur $(3\hat{x}\hat{x} - 1)$ a une symétrie de $l = 2$:

$$(3\hat{x}\hat{x} - 1)_{ij} = \sum_{m=-2}^2 \alpha_{ij}^m Y_2^m(\Omega_{\vec{x}}) \quad i, j = 1, 2, 3 \quad (5)$$

$$\text{où } \alpha_{ij}^m \equiv \int d\Omega_{\vec{x}} (3\hat{x}\hat{x} - 1)_{ij} Y_2^{m*}(\Omega_{\vec{x}}) \quad (6)$$

A l'aide du développement

$$e^{-i\vec{q}\vec{x}} = 4\pi \sum_{lm} (-i)^l j_l(qx) Y_l^m(\Omega_{\vec{q}}) Y_l^{m*}(\Omega_{\vec{x}})$$

il vient :

$$\begin{aligned} \int d\Omega_{\vec{x}} (3\hat{x}\hat{x} - 1)_{ij} e^{-i\vec{q}\vec{x}} &= -4\pi j_2(qx) \sum_m Y_2^m(\Omega_{\vec{q}}) \alpha_{ij}^m \\ &= -4\pi j_2(qx) (3\hat{q}\hat{q} - 1)_{ij} \end{aligned}$$

où on a utilisé les relations (5) et (6).

Alors on obtient :

$$\vec{G}(\vec{q}) = -4\pi (3\hat{q}\hat{q} - 1) f(q) \quad (7)$$

où

$$f(q) \equiv \int_0^\infty \frac{dx}{x} (1 - e^{-\lambda x}) j_2(qx) \quad (8)$$

Références

- A1 Abrikosov A.A., Gor'kov L.P., Dzyaloshinskii I.Y.,
"Quantum Field Theoretical Methods in Statistical
Physics", translated by D. Ter Haar (Pergamon Press,
Oxford 1965) § 26.
- A2 Achter E.K., Meyer L., Phys. Rev. 188, 291 (1969).
- B1 Baeriswyl D., Phys. Lett. 41A, 297 (1972).
- B2 Baeriswyl D., Jaeckle J., Helv. Phys. Acta 44, 554 (1971).
- B3 Bedeaux D., Mazur P., preprint.
- B4 Beliaev S.T., Sov. Phys. JETP 7, 289, 299 (1958).
- B5 Bogoliubov N.N., Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. 11, 77 (1947)
- B6 Bogoliubov N.N., "Lectures in Quantum Statistics" (Gordon
and Breach, NY 1967).
- B7 Bohm D., Salt S., Rev. Mod. Phys. 39, 894 (1967)
- B8 Brandow B.H., Ann. Phys. 64, 21 (1971).
- B9 Brillouin L., Compt. Rend. 158, 1331 (1914).
- B10 Brillouin L., Ann. Phys. (Paris) 17, 88 (1922).
- B11 Brückner K.A., Sawada K., Phys. Rev. 106, 1117, 1128 (1957).
- B12 Brückner K.A., in "The Many Body Problem", éd. De Witt C.
(John Wiley, NY 1959).

- B13 Burke T., Major K.G., Chester G.V., Ann. Phys. 42, 144 (1967).
- C1 Chester G.V., in "Lectures in Theoretical Physics XI B", éd. Mahanthappa K.T., Brittin W.E. (Gordon and Breach, NY 1969).
- C2 Chester G.V., Metz R., Reatto L., Phys. Rev. A1, 86 (1970).
- C3 Cheung T.H., Griffin A., Phys. Rev. A4, 237 (1971).
- C4 Cohen M., Feynman R.P., Phys. Rev. 107, 13 (1957).
- C5 Cowley R.A., communication privée.
- C6 Cowley R.A., preprint.
- C7 Cowley R.A., Woods A.D.B., Can. J. Phys. 49, 177 (1971).
- D1 Dietrich O.W., Graf E.H., Huang C.H., Passell L., Phys. Rev. A5, 1377 (1972).
- D2 Droz M., thèse (Université de Genève, 1973).
- E1 Edwards M.H., Can. J. Phys. 36, 884 (1958).
- E2 Einstein A., Ann. d. Phys. 33, 1275 (1910).
- E3 Enz C.P., Phys. Rev. A6, 1596 (1972).
- E4 Enz C.P., Phys. Rev. A6, 1605 (1972).
- E5 Enz C.P., "Méthodes des problèmes à N corps", cours CICP (Genève 1971).

- E6 Enz C.P., "La Superfluidité", cours à l'Université de Genève (1972), non publié.
- E7 Enz C.P., "Phénoménologie des systèmes à N corps", cours CICP (Genève 1970).
- F1 Feenberg E., "Theory of Quantum Fluids" (Academic Press, NY 1969).
- F2 Feenberg E., Am. J. Phys. 38, 684 (1970).
- F3 Fetter A.L., J. Low Temp. Phys. 6, 487 (1972).
- F4 Feynman R.P., Phys. Rev. 94, 262 (1954).
- F5 Feynman R.P. Cohen M., Phys. Rev. 102, 1189 (1956).
- F6 Forney J.J., thèse (Université de Genève, 1972).
- F7 Fröhlich H., "Theory of Dielectrics" (Clarendon Press, Oxford 1958).
- G1 Gavoret J., Nozières P., Ann. Phys. 28, 349 (1964).
- G2 Greytak T.J., Woerner R.L., J. Phys. (Paris), C1-269 (1972).
- G3 Greytak T.J., Woerner R.L., Yan J., Benjamin R., Phys. Rev. Lett. 25, 1547 (1970).
- G4 Greytak T.J., Yan J., Phys. Rev. Lett. 22, 987 (1969).
- G5 Greytak T.J., communication privée.
- G6 Griffin A., Phys. Rev. A6, 498 (1972).

- G7 Grimm H., Dransfeld K., Z. Naturforschung 22a, 1629 (1967).
- G8 Gross E., Nature (London) 126, 201, 400, 603 (1930).
- H1 Halley W.J., Phys. Rev. 181, 338 (1969).
- H2 Hallock R.B., Phys. Rev. A5, 320 (1972).
- H3 Henshaw D.G., Phys. Rev. 119, 914 (1960).
- H4 Henshaw D.G., Woods A.D.B., Phys. Rev. 121, 1266 (1961)
- H5 Hohenberg P.C., Platzman P.M., Phys. Rev. 152, 198 (1966).
- H6 Hugenholtz N.M., Pines D., Phys. Rev. 116, 489 (1959).
- I1 Iwamoto F., Progr. Theor. Phys. 44, 1121 (1970).
- I2 Iwamoto F., Progr. Theor. Phys. 44, 1135 (1970).
- J1 Jackson H.W., Phys. Rev. A4, 2386 (1971).
- J2 Jackson H.W., Phys. Rev. 180, 184 (1969).
- J3 Jackson H.W., Feenberg E., Ann. Phys. 15, 266 (1961).
- J4 Jackson H.W., Feenberg E., Rev. Mod. Phys. 34, 686 (1962).
- J5 Jackson J.D., "Classical Electrodynamics" (John Wiley 1966).
- J6 Jaeckle J., non publié.
- K1 Kadanoff L.P., Baym G., "Quantum Statistical Mechanics"
(Benjamin 1962).
- K2 Kebukawa T., Yamasaki S. Sumakawa S., preprint.
- K3 Komarov L. I. Fischer I. Z. Sov. Phys. JETP 16 1358 (1963)

- K4 Kondor L., Szépfalussy P., Acta Phys. Hung, 24, 81 (1968).
- L1 Lai H.W., Sim H.K., Woo C.W., Phys. Rev. A1, 1536 (1970).
- L2 Landau L.D., J. Phys. USSR 5, 71 (1941).
- L3 Landau L.D., J. Phys. USSR 11, 91 (1947).
- L4 Landau L.D., Placzek G., Phys. Z. Sowj. 5, 172 (1934).
- L5 Landsberg G., Mandelstam L., Naturwiss. 16, 57 (1928).
- L6 Lee T.D., Huang K., Yang C.N., Phys. Rev. 106, 1135 (1957).
- L7 Lieb E., "Lectures in Theor. Phys." VII C, éd. Brittin (1964).
- L8 "Light Scattering Spectra in Solids", Proc. Internat. Conf. New York 1968 (Springer, NY 1968).
- L9 "Light Scattering in Solids", Proc. Internat. Conf. Paris 1971 (Flammarion, Paris 1971).
- M1 Maris H.J., Massey W.E., Phys. Rev. Lett. 25, 220 (1970).
- M2 Massey W.E., Phys. Rev. 151, 153 (1966).
- M3 Miller A., Pines D., Nozières P., Phys. Rev. 127, 1452 (1962).
- N1 Nakajima S., Progr. Theor. Phys. 45, 353 (1971).
- N2 Nepomnyashchii Y.A., JETP Lett. 14, 325 (1971).
- N3 Newton R.G., "Scattering Theory of Waves and Particles" (Mc Graw Hill 1966).
- N4 Nishiyama T., Progr. Theor. Phys. 45, 730 (1971).

- P1 Parry W.E., Ter Haar D., Ann. Phys. 19, 496 (1962).
- P2 Passell L., communication privée.
- P3 Penrose O., Onsager L., Phys. Rev. 104, 576 (1956).
- P4 Pike E.R., Vaughan J.M., Vinen W.F., J. Phys. C. 3, L40 (1970).
- P5 Pines D., "The Many Body Problem" (Benjamin, NY 1962).
- P6 Pitaevskii L.P., Zh. Eksp. Teor. Fiz. 36, 1168 (1959)
(traduction anglaise : Sov. Phys. JETP 9, 830 (1959))
- P7 Pitaevskii L.P., JETP Lett. 12, 118 (1970).
- R1 Raman C.V., Indian J. Phys. 2, 387 (1928).
- R2 Rayleigh Lord, Phil. Mag. 41, 107, 274, 447 (1871).
- R3 Reatto L., Phys. Rev. 183, 334 (1969).
- R4 Rosenfeld L., "Théorie des Electrons" (Hermann, Paris 1951).
- R5 Ruvalds J., Zawadowski, Phys. Rev. Lett. 25, 333 (1970).
- S1 Sears V.F., Phys. Rev. 185, 200 (1969).
- S2 Sears V.F., Phys. Rev. A1, 1699 (1970).
- S3 Smoluchowski, Ann. d. Phys. 25, 205 (1908).
- S4 Solana J., Celli V., Ruvalds J., Tütto I., Zawadowski A.,
Phys. Rev. A6, 1665 (1972).
- S5 Sposito G., Hukoveh E., J. Low Temp. Phys. 9, 495 (1972).

- S6 Stephen M.J., Phys. Rev. 187, 279 (1969).
- S7 Straley J.P., Phys. Rev. A5, 338 (1972).
- S8 Sunakawa S., Yamasaki S., Kebukawa T., Progr. Theor. Phys. 41, 919 (1969).
- S9 Sunakawa S., Yamasaki S., Kebukawa T., Progr. Theor. Phys. 44, 565 (1970).
- V1 Van Hove L., Phys. Rev. 95, 249, 1374 (1954).
- W1 Wilks J., "Properties of Liquid and Solid Helium" (Oxford Univ. Press 1967).
- W2 Winterling G., Holmes F.S., Greytak T.J., Phys. Rev. Lett. 30, 427 (1973).
- W3 Woods A.D.B., Svensson E.C., Martel P., Symposium on Neutron Inelastic Scattering, Grenoble, IAEA SM-155 D-2.
- W4 Woods A.D.B., Svensson E.C., Martel P., Phys. Lett. 43A, 223 (1973).
- W5 Wu F.Y., Phys. Lett. 34A, 446 (1971).
- W6 Wu F.Y., Chien M.K., J. Math. Phys. 11, 1912 (1970).
- Y1 Yamasaki S., Kebukawa J., Sunakawa S., preprint.
- Y2 Yarnell J.L., Arnold G.P., Bendt P.J., Kerr E.C., Phys. Rev. 113, 1379 (1959).
- Y3 Yau J., Stephen M.J., Phys. Rev. Lett. 27, 482 (1971).

- Z1 Zawadowski A., Ruvalds J., Solana J., Phys. Rev. 5A, 339 (1972).
- Z2 Ziman J.M., "Principles of the Theory of Solids" (Cambridge University Press 1969), chap. 8.
- Z3 Zubarev D.N., Bogoliubov N.N., Sov. Phys. JETP 1, 83 (1955).

